

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001 年 10 月 4 日 (04.10.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/72900 A1

- (51) 国際特許分類: C08L 69/00, (72) 発明者; および
C08K 3/24, 5/52, C08L 25/00, 67/00 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 高木 誠 (TAK-
AGI, Makoto) [JP/JP]; 〒100-0011 東京都千代田区内
(21) 国際出願番号: PCT/JP01/02474 幸町1丁目2番2号 帝人化成株式会社内 Tokyo (JP).
- (22) 国際出願日: 2001 年 3 月 27 日 (27.03.2001) (74) 代理人: 弁理士 大島正孝 (OHSHIMA, Masataka); 〒
160-0004 東京都新宿区四谷四丁目3番地 福屋ビル 大
(25) 国際出願の言語: 日本語 島特許事務所 Tokyo (JP).
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.
- (30) 優先権データ: 特願2000-88195 2000 年 3 月 28 日 (28.03.2000) JP (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE,
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 帝人化 添付公開書類:
成株式会社 (TEIJIN CHEMICALS, LTD.) [JP/JP]; 〒 ー 国際調査報告書
100-0011 東京都千代田区内幸町1丁目2番2号 Tokyo 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される
(JP). 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: RECLAIMED RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 再生樹脂組成物

(57) Abstract: A reclaimed resin composition which comprises (I) a pulverized molding (ingredient (A)) satisfying the following: (1) it has an aromatic polycarbonate resin content of 30 to 98 wt.%, (2) it has a viscosity-average molecular weight of 17,000 to 30,000, and (3) it has a wet heat retention of 60% or higher and (II) an aromatic polycarbonate resin (ingredient (B)). The reclaimed resin composition, which contains the pulverized aromatic polycarbonate resin molding, has excellent long-term retention of material properties and has satisfactory mechanical strength.

(57) 要約:

(I) (1) 芳香族ポリカーボネート樹脂の含有量が30～98重量%の成形品の破砕物であり、

(2) 該破砕物は、17,000～30,000の粘度平均分子量を有し、かつ

(3) 該破砕物は湿熱保持率が60%以上を有する、
を満足する成形品の破砕物 (A成分)、および

(II) 芳香族ポリカーボネート樹脂 (B成分) よりなる再生樹脂組成物。

本発明によれば、芳香族ポリカーボネート樹脂成形品の粉砕物からなる長期の物性保持性に優れ、かつ機械的強度の良好な再生樹脂組成物を提供することができる。



WO 01/72900 A1

明 細 書

再生樹脂組成物

5 発明の詳細な説明

発明の属する技術分野

本発明は、再生樹脂組成物に関する。さらに詳しくは、特定の条件を満足する成形品破砕物を再生樹脂組成物として使用することにより、機械的強度、およびリサイクル効率に優れた再生樹脂組成物に関する。

10

従来技術

芳香族ポリカーボネート樹脂は、優れた機械的特性、熱的特性を有しているため、工業的に広く利用されている。また芳香族ポリカーボネート樹脂は他の熱可塑性樹脂とブレンドしてポリマーアロイや、難燃性を高めるために難燃剤を添加した難燃性ポリカーボネート樹脂組成物も数多く開発され、OA機器分野、電気・電子機器分野、自動車分野、その他雑貨などの分野に広く使用されている。特に近年は、芳香族ポリカーボネート樹脂にABS樹脂および難燃剤を配合した樹脂組成物がOA機器、電子電気機器の筐体などの部品において、著しく増加しており、さらにかかる難燃剤としてはリン酸エステルが主流となりつつある。

20 一方近年は資源の再利用、環境保護の観点から不用になった製品を回収し再利用する、いわゆるリサイクルの検討が盛んに行われ、上記の如く大量の樹脂を使用するOA機器の分野においては重要課題の1つとされている。

かかる樹脂のリサイクルに関しては、従来回収された樹脂を、高度な機械的特性や難燃性などの特性が特に要求されない分野に使用方法が主として取られてきた。しかしながら近年は、「リサイクル」なる語が本来有する概念、すなわち、再生前の樹脂組成物が本来有する特性とほぼ同等の特性を再生後の樹脂組成物においても達成し、いわゆるクローズドリサイクルを達成することが求められている。このため廃棄された製品から回収された樹脂に、いわゆるバージン樹脂

25

を適量混合し、再生前の樹脂組成物が有する特性に近い再生樹脂組成物を得る試みが盛んに為されているのが現状である。

しかしながら、かかる他の樹脂や難燃剤を含んだ芳香族ポリカーボネート樹脂成形品において、上記のリサイクルを達成するためには以下に示す問題点が挙げられる。

1. 回収される機器は、回収された樹脂を得るまでの過程で芳香族ポリカーボネート樹脂の劣化を進行させる環境に置かれやすい。
2. その際、難燃剤、特にリン酸エステルや無機酸および有機酸のアルカリ（土類）金属塩、および他の樹脂の存在は、かかる劣化、特に加水分解促進の因子となり得、劣化がかなり進行する場合がある。
3. 上記の劣化因子を含有する、または劣化した樹脂をリサイクルした場合、再生された樹脂組成物は、再生前の部材が有する特性とほぼ同等の特性を達成することができず、かかる特性を達成しようとした場合、回収された樹脂の割合を低くせざるを得ず、リサイクル効率が低下する。
4. さらに、製品が使用される環境および期間が一樣ではないため、それによっても最終的に劣化の程度等が異なり、回収された樹脂の品質にバラツキを生じ易い。かかるバラツキの範囲で常に一定以上の特性を保持するためには、バージン樹脂に対する回収された樹脂の割合をバラツキの下限值において設定せざるを得ず、結果的にリサイクル効率が低下する。
5. リサイクル効率を上げるために、製品の管理、および回収後の管理を徹底し、例えばほぼ同時期に生産された同一材料による回収品に分別して再利用するなどの方法も取り得るが、このような対策はリサイクルのコストを高めるのみで、結果的に所期の目的が達成されない。

- 一方で芳香族ポリカーボネート樹脂のリサイクルについては、従来からコンパクトディスク（CD）に代表される光記録媒体の分野で各種の提案がなされている。例えば特開平8-311326号公報では、CD粉碎物、芳香族ポリカーボネート樹脂、およびABS樹脂などからなる芳香族ポリカーボネート樹脂組成物が開示されている。しかしながら、かかる公報に提案されたりサイクルにおいて

は、上記問題をあまり重要視する必要はなかった。すなわち以下の点で事情が異なっている。

(i) CDなどは、極少量の添加剤を除いてはほぼ芳香族ポリカーボネート樹脂単体からなり、上記劣化の問題を基本的に生じにくく、したがって品質のバラ

5 ツキの問題も生じにくい。

(ii) CDの場合は、耐衝撃性が低い樹脂が使用されており、かかる特性を前提に再生樹脂組成物の組成設計がなされる。

したがって、芳香族ポリカーボネート樹脂に、リン酸エステルや各種の塩といった難燃剤、またはABS樹脂やポリエステル樹脂などの他の樹脂を含んでなる

10 芳香族ポリカーボネート樹脂について、その有効な再生利用の方法およびその良好な特性を有する再生樹脂組成物が求められているものの、これらに関する提案は未だなされていないのが現状である。

すなわち、不用になったポリカーボネート樹脂を含有する樹脂組成物からなる成形品を広く回収して再生し、リサイクル効率に優れ、さらにかかる再生樹脂組

15 成物が再度多様な製品に適用し得る機械的強度の良好な再生樹脂組成物が強く要望されている。

発明が解決しようとする課題

本発明の目的は、芳香族ポリカーボネート樹脂を含有する樹脂組成物からなる
20 成形品を回収し、かかる回収された樹脂を他のバージン樹脂と混合して再生樹脂組成物を製造する場合において、高いリサイクル効率と、再生前の部材が有する特性とほぼ同等の特性を可能とする再生樹脂組成物を提供することにある。

本発明者は、上記目的を達成すべく鋭意検討した結果、回収された成形品破砕物として、分子量および耐湿熱特性において特定の条件を満足するものを使用し、
25 かかる成形品破砕物と芳香族ポリカーボネート樹脂からなる樹脂組成物を製造することにより、上記課題が解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

課題を解決するための手段

本発明によれば、前記本発明の目的は、

(I) (1) 芳香族ポリカーボネート樹脂の含有量が30～98重量%の成形品の破砕物であり、

(2) 該破砕物は、17,000～30,000の粘度平均分子量を有し、かつ

5 (3) 該破砕物は湿熱保持率が60%以上を有する、

を満足する成形品の破砕物 (A成分)、および

(II) 芳香族ポリカーボネート樹脂 (B成分) よりなる再生樹脂組成物により達成される。

以下、本発明の再生樹脂組成物についてさらに詳細に説明する。

10 本発明におけるA成分の成形品破砕物について説明する。本発明で使用する成形品破砕物は、特に成形品の用途、形状、色相などその成形品が使用される製品において要求される特性や、成形品の使用期間や使用される環境などを限定するものではない。さらに特定の成形品からなる成形品破砕物に限らず、1種以上の成形品からなる破砕物を混合して使用することもできる。

15 本発明においてA成分としての「成形品」とは、①成形品が製品の一部として市場で使用され、消費者によりその製品の使用期間が終了して回収された成形品および②製品化の工程で発生した不良品、製品の市場における流通過程で在庫品として回収された成形品などの、バージン樹脂ペレットを少なくとも一度成形加工の工程を経た成形品をいう。ただし成形加工の工程で発生する試作品、不良品、
20 スプルー、ランナーのような付随的に発生する成形品は、通常成形業界で実施されている範囲で、再生樹脂組成物中に混入されていても差支えない。

以下、本明細書において成分の名称とその成分の内容は下記の意味を有するものである。

25	<u>成分の名称；</u>	<u>成分の内容</u>
	A成分；	成形品の破砕物
	A-1成分；	A成分中のポリカーボネート樹脂
	A-2-PS成分；	A成分中のスチレン系樹脂

- A-2-PE成分； A成分中の芳香族ポリエステル樹脂
- A-3成分； A成分中の難燃剤
- A-3-a成分； A成分中の難燃剤としてのリン酸エステル
- A-3-b成分； A成分中の難燃剤としての有機シロキサン化合物
- 5 A-3-c成分； A成分中の難燃剤としてのアルカリ（土類）金属塩
- A-4成分； A成分中の衝撃改良剤
- A-5成分； A成分中の無機充填剤
- B成分； バージンポリカーボネート樹脂
- C成分； 再生樹脂組成物
- 10 C-1成分； C成分中のポリカーボネート樹脂
- C-2-PS成分； C成分中のスチレン系樹脂
- C-2-PE成分； C成分中の芳香族ポリエステル樹脂
- C-3成分； C成分中の難燃剤
- C-3-a成分； C成分中の難燃剤としてのリン酸エステル
- 15 C-3-b成分； C成分中の難燃剤としての有機シロキサン化合物
- C-3-c成分； C成分中の難燃剤としてのアルカリ（土類）金属塩
- C-4成分 C成分中の衝撃改良剤
- C-5成分； C成分中の無機充填剤
- 20 本発明の成形品破砕物（A成分）は芳香族ポリカーボネート樹脂（A-1成分）を30～98重量%以上含有してなるものである。さらに、（1）以下に規定する粘度平均分子量が17,000～30,000であり、および（2）以下に規定する湿熱保持率が60%以上である破砕物を使用する必要がある。
- 破砕物（A成分）中の芳香族ポリカーボネート樹脂（A-1成分）の割合は3
- 25 0～98重量%、好ましくは40～90重量%の場合に、本発明の効果が発揮される。A成分の成形品破砕物中における芳香族ポリカーボネート樹脂の含有割合は、アルカリ分解処理、熱分解処理、溶媒抽出処理などの分離手法とIR分析、NMR分析、熱分解ガスクロマトグラフ分析、近赤外分析、UV分析、SIMS

分析、E S C A分析などの特定ピークを相対強度により比較する方法とを任意に組み合わせて分析することができ、簡便にかかる割合を知ることができる。

- また、A成分において、粘度平均分子量は17,000~30,000、好ましくは18,000~26,000である。粘度平均分子量が17,000より
- 5 低い場合、再生樹脂組成物の機械的強度を高めるためバージン樹脂に対するA成分の割合が低くなりリサイクル効率が十分に高められない。さらに再生前の樹脂組成物が劣化することにより分子量低下が生じている場合、かかる劣化物が再生樹脂組成物の劣化因子となり、再生樹脂組成物の製造時において劣化を進行させ得るため十分な機械的強度などを安定して得ることが困難となる。一方、粘度平均
- 10 分子量が30,000より高いと成形加工性が低下するため、再生樹脂組成物の製造時の熱的負荷が増大するため好ましくなく、配合割合を低下させればリサイクル効率の低下を招く。

- なお、かかるA成分を特定するために使用される粘度平均分子量とは、まず成形品破碎物であるA成分を、A成分の20~30倍重量の塩化メチレンに溶解し、
- 15 かかる可溶分をセライト濾過により採取した後、溶媒を除去して十分に乾燥し、塩化メチレン可溶分の固体を得る。かかる固体0.7gを塩化メチレン100mlに溶解した溶液から、次式により算出される20℃における比粘度を、オストワルド粘度計を用いて求める。

$$\text{比粘度} (\eta_{sp}) = (t - t_0) / t_0$$

- 20 $[t_0 \text{ は塩化メチレンの落下秒数、} t \text{ は試料溶液の落下秒数}]$

さらに、上記で求められた比粘度を次式にて挿入して粘度平均分子量Mを求める。

$$\eta_{sp}/c = [\eta] + 0.45 \times [\eta]^2 c$$

$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-4} M^{0.83}$$

- 25 $c = 0.7$

一方、本発明でA成分を特定するために規定する湿熱保持率とは、成形品破碎物を120℃、100%RHの湿熱加圧環境下にて24時間放置処理し、処理後に測定される上記の粘度平均分子量から、以下の式で定義される値である。

$$\text{湿熱保持率 (\%)} = (\text{湿熱処理後の粘度平均分子量} / \text{湿熱処理前の粘度平均分子量}) \times 100$$

かかる湿熱保持率が60%未満では、再生樹脂組成物からの成形品の機械的物性が低下するようになる。かかる湿熱保持率の値を満足し得ないものは、再生樹脂組成物製造時の劣化を生じ易いためである。より好ましくはかかる湿熱保持率が70%以上のものである。

本発明は、特定量の芳香族ポリカーボネート樹脂を含有し、特定の粘度平均分子量からなり、かつ本発明の湿熱保持率を有する成形品破砕物（A成分）を使用するものである。かかる条件を満足する成形品破砕物の選択は上記の如く簡便な方法で行うことが可能であり、芳香族ポリカーボネート樹脂を含有する品質および／または組成の多様な回収された樹脂組成物を極めて有効に活用することが可能となる。そしてバージン樹脂である芳香族ポリカーボネート樹脂（B成分）などと混合して得られた再生樹脂組成物は、良好な機械的特性を安定して達成するものである。

本発明のA成分である成形品破砕物の形状は特に限定されるものではないが、加工性、取り扱い性などの点から破砕物の最大の粒体長径が1～30mmの範囲のものが好ましい。粉砕は、公知の粉砕装置を使用し粉砕することができる。例えば回転式カッターミル、ロールクラッシャー、ハンマークラッシャー、ディスクミル、ピンミル、ターボミル、ジェットミルなどが使用できる。

また再生樹脂組成物（C成分）中におけるA成分の割合としては、再生樹脂組成物100重量%中5～60重量%が好ましい。より好ましくは6～50重量%、さらに好ましくは7～40重量%、よりさらに好ましくは10～40重量%、特に好ましくは10～35重量%である。A成分の割合が5～60重量%の場合には、良好なりサイクル効率と機械的特性や長期の特性との両立が可能となる。

一方、再生樹脂組成物（C成分）中におけるバージンの芳香族ポリカーボネート樹脂（B成分）は、組成物当たり、5～90重量%、好ましくは10～85重量%、特に好ましくは20～85重量%である。

一方、破砕物（A成分）中の印刷塗膜、シール、ラベル、化粧塗装膜、導電塗

装、導電メッキ、金属蒸着などの成形品の表面加工に由来する樹脂組成物以外の成分は破砕物中で1重量%以下になるようにこれらの成分を除去したのち成形品を破砕したものが好ましく、特により高い耐衝撃性が要求される場合にはより好ましい条件である。

- 5 かかる印刷塗膜やメッキなどの表面塗膜成分を除去する方法としては、2本のロール間で圧延する方法、加熱・加圧水、各種溶剤、酸・アルカリ水溶液などに接触させる方法、かかる塗膜部分を機械的に削り取る方法、超音波を照射する方法、およびプラスト処理する方法などを挙げることができ、これらを組み合わせて使用することも可能である。
- 10 さらにA成分の成形品破砕物は、実質的に芳香族ポリカーボネート樹脂のみからなるものでもよいが、通常の成形品破砕物は芳香族ポリカーボネート樹脂に他の成分を含有したものである。その他の成分は特に限定するものではないが、例えば他の熱可塑性樹脂、難燃剤、滴下防止剤、強化充填剤、衝撃改良剤、滑剤、安定剤、着色剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、離型剤などを挙げることができる。
- 15 特に難燃剤や他の熱可塑性樹脂を含んでなる成形品の破砕物においても、本発明において良好な再生樹脂組成物が得られる点でこれらを含む成形品破砕物を好適に使用できる。

次に、A成分の成形品破砕物における芳香族ポリカーボネート樹脂以外の成分と組成について、その好ましい態様を説明する。

- 20 本発明のA成分としては、芳香族ポリカーボネート樹脂（A-1成分）以外にスチレン系樹脂（A-2-P S成分）または芳香族ポリエステル樹脂（A-2-P E成分）を含有していることが好ましい。その場合、A成分中におけるスチレン系樹脂（A-2-P S成分）または芳香族ポリエステル樹脂（A-2-P E成分）の含有割合は1～65重量%、好ましくは5～50重量%、特に好ましくは
- 25 10～40重量%であるのが有利である。

本発明のA成分中には、芳香族ポリカーボネート樹脂（A-1成分）およびスチレン系樹脂（A-2-P S成分）または芳香族ポリエステル樹脂（A-2-P E成分）の他に、難燃剤（A-3成分）が含有されていてもよい。難燃剤（A-

3成分)としてはリン酸エステル(A-3-a成分)、有機シロキサン化合物(A-3-b成分)あるいはアルカリ(土類)金属塩(A-3-c成分)が本発明の目的のために好ましい。これら3種の難燃剤は、それぞれA成分中に含有される割合は好ましい範囲が存在する。リン酸エステル(A-3-a成分)はA成分中1~30重量%の範囲が好ましく、特に5~20重量%の範囲が好ましい。難燃剤が有機シロキサン化合物(A-3-b成分)の場合は、A成分中、0.01~10重量%が好ましく、0.1~5重量%がより好ましく、0.5~3重量%が特に好ましい。また難燃剤がアルカリ(土類)金属塩(A-3-c成分)の場合、A成分中0.0005~1重量%が好ましく、0.001~0.2重量%がより好ましく、0.002~0.1重量%が特に好ましい。

A成分の好ましい組成の例を示すと、下記の(I)、(II)および(III)であり、特に好ましい組成は下記(I)および(II)である。

好ましいA成分の組成(I)

下記の(1)~(5)よりなる組成物から形成された成形品の破砕物。

- (1) 芳香族ポリカーボネート樹脂(A-1成分) 30~98重量%、好ましくは40~90重量%
- (2) スチレン系樹脂(A-2-PS成分) 1~65重量%、好ましくは5~50重量%
- (3) 難燃剤として(a)リン酸エステル(A-3-a成分) 1~30重量%、好ましくは5~20重量%、(b)有機シロキサン化合物(A-3-b成分) 0.01~10重量%、好ましくは0.1~5重量%または(c)アルカリ(土類)金属塩(A-3-c成分) 0.0005~1重量%、好ましくは0.001~0.2重量%
- (4) 衝撃改良剤(A-4成分) 0~20重量%、好ましくは0.5~20重量%、より好ましくは1~15重量%
- (5) 強化充填剤(A-5成分) 0~60重量%、好ましくは1~60重量%、より好ましくは2~50重量%

好ましいA成分の組成(II)

下記の(1)～(5)よりなる組成物から形成された成形品の破砕物。

(1) 芳香族ポリカーボネート樹脂(A-1成分) 30～98重量%、好ましくは40～90重量%

(2) 芳香族ポリエステル樹脂(A-2-PE成分) 1～65重量%、好ましくは5～50重量%

(3) 難燃剤として(a)リン酸エステル(A-3-a成分) 1～30重量%、好ましくは5～20重量%、(b)有機シロキサン化合物(A-3-b成分) 0.01～10重量%、好ましくは0.1～5重量%または(c)アルカリ(土類)金属塩(A-3-c成分) 0.0005～1重量%、好ましくは0.001～0.2重量%

(4) 衝撃改良剤(A-4成分) 0～20重量%、好ましくは0.5～20重量%、より好ましくは1～15重量%

(5) 強化充填剤(A-5成分) 0～60重量%、好ましくは1～60重量%、より好ましくは2～50重量%

15 好ましいA成分の組成(III)

下記の(1)～(4)よりなる組成物から形成された成形品の破砕物。

(1) 芳香族ポリカーボネート樹脂(A-1成分) 50～98重量%、好ましくは55～98重量%

(2) 難燃剤として(a)リン酸エステル(A-3-a成分) 1～30重量%、好ましくは5～20重量%、(b)有機シロキサン化合物(A-3-b成分) 0.01～10重量%、好ましくは0.1～5重量%または(c)アルカリ(土類)金属塩(A-3-c成分) 0.0005～1重量%、好ましくは0.001～0.2重量%

(3) 衝撃改良剤(A-4成分) 0～20重量%、好ましくは0.5～20重量%、より好ましくは1～15重量%

(4) 強化充填剤(A-5成分) 0～30重量%、好ましくは1～30重量%、より好ましくは2～25重量%

次に本発明のB成分である芳香族ポリカーボネート樹脂について説明する。本

発明のB成分は、樹脂として重合され、粉粒体やペレットに造粒された状態であり成形品として形成されていない、いわゆるバージンの芳香族ポリカーボネート樹脂をいう。したがって一度市場において使用され成形品として回収された本発明のA成分とは明確に区別されるものである。

- 5 本発明においては、再生樹脂組成物（C成分）を調製するに際し、A成分とB成分とを前記割合で混合すればよいが、さらにB成分以外の他の添加剤をさらに配合することも可能である。かかる他の添加剤としては、例えば、他の熱可塑性樹脂、難燃剤、滴下防止剤、強化充填剤、衝撃改良剤、滑剤、安定剤、着色剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、離型剤、抗菌剤、防カビ剤、帯電防止剤などを挙げ
- 10 ることができる。これらは目的とする再生樹脂組成物の特性に合わせて適宜配合することが可能である。

- 本発明は好適には、特定の条件を満足するA成分を用いて、A成分の粉碎前の成形品と同等の用途に使用可能な再生樹脂組成物を提供することを目的とする。したがって、本発明の再生樹脂組成物（C成分）の組成は、A成分の組成に近い
- 15 ものが好ましい。より好ましくは、少なくとも主たる構成成分である、芳香族ポリカーボネート樹脂、スチレン系樹脂、芳香族ポリエステル樹脂、および難燃剤のC成分中の割合が、それぞれA成分中の割合に対して、0.7～1.5倍の範囲であることが好ましく、0.75～1.45倍の範囲であることがより好ましく、0.8～1.35倍であることがさらに好ましい。かかる組成割合が達成で
- 20 きるよう上記B成分およびB成分以外のバージンの添加剤が配合することが好ましい。

- 本発明者らの研究によれば、本発明の再生樹脂組成物（C成分）は、A成分およびB成分を前記割合で混合し、最終的に下記の（I）、（II）または（III）の組成のものとするのが適当であり、長期の物性安定性並びに機械的強度の良好
- 25 な成形品を得ることができることが見出された。特に好ましい再生樹脂組成物は下記（I）または（II）の組成である。

好ましい再生樹脂組成物（I）

- （1）芳香族ポリカーボネート樹脂（C-1成分）30～96重量%、好ましく

は35～90重量%、より好ましくは45～90重量%、さらに好ましくは55～90重量%

(2) スチレン系樹脂 (C-2-PS成分) 3～40重量%、好ましくは5～35重量%、より好ましくは5～30重量% および

- 5 (3) 難燃剤 (C-3成分) 0.01～30重量%、好ましくは0.01～20重量%

上記再生樹脂組成物 (I) にはまた衝撃改良剤 (C-4成分) が0.5～20重量%、好ましくは1～15重量%含有されていることが望ましい。さらに上記再生樹脂組成物 (I) には強化充填剤 (C-5成分) が1～60重量%、好ましくは2～50重量%、特に好ましくは3～45重量%含有することができる。この再生樹脂組成物 (I) における難燃剤 (C-3成分) は、リン酸エステル (C-3-a成分) であることが適当であり、その含有割合は1～30重量%、好ましくは2～20重量%、より好ましくは5～20重量%、さらに好ましくは5～15重量%であるのが有利である。

15 好ましい再生樹脂組成物 (II)

(1) 芳香族ポリカーボネート樹脂 (C-1成分) 30～96重量%、好ましくは35～90重量%、より好ましくは45～90重量%、さらに好ましくは35～90重量%

- 20 (2) 芳香族ポリエステル樹脂 (C-2-PE成分) 3～40重量%、好ましくは5～35重量%、より好ましくは5～30重量% および

(3) 難燃剤 (C-3成分) 0.01～30重量%、好ましくは0.01～20重量%

- 25 上記再生樹脂組成物 (II) にはまた衝撃改良剤 (C-4成分) が0.5～20重量%、好ましくは1～15重量%含有されていることが望ましい。さらに上記再生樹脂組成物 (II) には強化充填剤 (C-5成分) が1～60重量%、好ましくは2～50重量%、特に好ましくは3～45重量%含有することができる。

この再生樹脂組成物 (II) における難燃剤 (C-3成分) は、リン酸エステル (C-3-a成分) であることが適当であり、その含有割合は、1～30重量%、

好ましくは2～20重量%、より好ましくは5～20重量%、さらに好ましくは5～15重量%であるのが有利である。

好ましい再生樹脂組成物 (III)

(1) 芳香族ポリカーボネート樹脂 (C-1成分) 50～98重量%、好ましくは55～98重量%

(2) 難燃剤 (C-3成分) 0.01～30重量%、好ましくは0.01～20重量% および

(3) 衝撃改良剤 (C-4成分) 0～20重量%、好ましくは1～15重量%

上記再生樹脂組成物 (III) にはさらに強化充填剤 (C-5成分) が1～30重量%、好ましくは2～25重量%含有することができる。

この再生樹脂組成物 (III) における難燃剤 (C-3成分) は、リン酸エステル (C-3-a成分) であることが適当であり、その含有割合は、1～30重量%、好ましくは2～20重量%、より好ましくは5～20重量%、さらに好ましくは5～15重量%であるのが有利である。

15 前記した本発明の再生樹脂組成物 (I)、(II) および (III) は、好ましい組成物であり、この組成物から形成された成形品は、優れた物性を有している。すなわち前記組成物から形成された成形品は、湿熱保持率が60%以上、好適条件下では70%以上であり、UL 94規格による難燃テストは好適条件下ではV-0を満足する。また成形品は衝撃値保持率が60%以上、好適条件下では70%
20 以上を示す。

以下、本発明におけるA成分、B成分およびC成分に関して、樹脂、難燃剤、衝撃改良剤、無機充填剤およびその他の添加成分について説明する。

芳香族ポリカーボネート樹脂 (A-1成分、B成分およびC-1成分) は、例えば二価フェノールとカーボネート前駆体とを界面重縮合法または溶融エステル交換法で反応させて得られたものの他、カーボネートプレポリマーを固相エステル交換法により重合させたもの、または環状カーボネート化合物の開環重合法により重合させて得られるものである。

ここで使用される二価フェノールの代表的な例としては、ハイドロキノン、レ

- ゾルシノール、4, 4'-ジヒドロキシジフェニル、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス{(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチル)フェニル}メタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-1-フェニルエタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)
- 5 プロパン(通称ビスフェノールA)、2, 2-ビス{(4-ヒドロキシ-3-メチル)フェニル}プロパン、2, 2-ビス{(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチル)フェニル}プロパン、2, 2-ビス{(4-ヒドロキシ-3, 5-ジブromo)フェニル}プロパン、2, 2-ビス{(3-イソプロピル-4-ヒドロキシ)フェニル}プロパン、2, 2-ビス{(4-ヒドロキシ-3-フェニル)フェニル}プロパン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3-メチルブタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3, 3-ジメチルブタン、2, 4-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ペンタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-4-メチルペンタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-4-イソプロピルシクロヘキサン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン、9, 9-ビス{(4-ヒドロキシ-3-メチル)フェニル}フルオレン、 α , α' -ビス(4-ヒドロキシフェニル)-o-
- 20 ジイソプロピルベンゼン、 α , α' -ビス(4-ヒドロキシフェニル)-m-ジイソプロピルベンゼン、 α , α' -ビス(4-ヒドロキシフェニル)-p-ジイソプロピルベンゼン、1, 3-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-5, 7-ジメチルアダマンタン、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルホキシド、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルケトン、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルエーテルおよび4, 4'-ジヒドロキシジフェニルエステル等があげられ、これらは単独または2種以上を混合したものであってもよい。

なかでもビスフェノールA、2, 2-ビス{(4-ヒドロキシ-3-メチル)

フェニル} プロパン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、2, 2-
-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3-メチルブタン、2, 2-ビス(4-ヒ
ドロキシフェニル)-3, 3-ジメチルブタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ
フェニル)-4-メチルペンタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-
5 3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサンおよび α , α' -ビス(4-ヒドロキシ
フェニル)-*m*-ジイソプロピルベンゼンからなる群より選ばれた少なくとも1
種のビスフェノールより得られる単独重合体または共重合体が好ましく、特に、
ビスフェノールAの単独重合体および1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-
-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサンとビスフェノールA、2, 2-ビス
10 {(4-ヒドロキシ-3-メチル)フェニル}プロパンまたは α , α' -ビス
(4-ヒドロキシフェニル)-*m*-ジイソプロピルベンゼンとの共重合体が好ま
しく使用される。

カーボネート前駆体としてはカルボニルハライド、カーボネートエステルまた
はハロホルメート等が使用され、具体的にはホスゲン、ジフェニルカーボネート
15 または二価フェノールのジハロホルメート等が挙げられる。

上記二価フェノールとカーボネート前駆体を界面重縮合法または溶融エステル
交換法によって反応させて芳香族ポリカーボネート樹脂を製造するに当っては、
必要に応じて触媒、末端停止剤、二価フェノールの酸化防止剤等を使用してもよ
い。また芳香族ポリカーボネート樹脂は三官能以上の多官能性芳香族化合物を共
20 重合した分岐ポリカーボネート樹脂であっても、芳香族または脂肪族の二官能性
カルボン酸を共重合したポリエステルカーボネート樹脂であってもよく、また、
得られた芳香族ポリカーボネート樹脂の2種以上を混合した混合物であってもよ
い。

三官能以上の多官能性芳香族化合物としては、フロログルシン、フロログルシ
25 ド、または4, 6-ジメチル-2, 4, 6-トリス(4-ヒドロキシフェニル)
ヘプテン-2、2, 4, 6-トリメチル-2, 4, 6-トリス(4-ヒドロキシ
フェニル)ヘプタン、1, 3, 5-トリス(4-ヒドロキシフェニル)ベンゼン、
1, 1, 1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、1, 1, 1-トリス

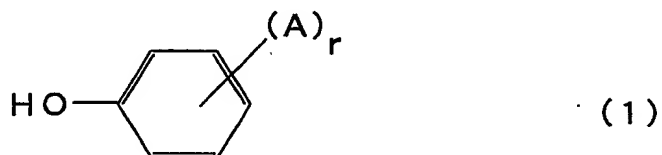
(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) エタン、2, 6-ビス(2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェノール、4-{4-[1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エチル]ベンゼン}- α , α -ジメチルベンジルフェノール等のトリスフェノール、テトラ(4-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス(2, 4-ジヒドロキシフェニル)ケトン、1, 4-ビス(4, 4-ジヒドロキシトリフェニルメチル)ベンゼン、またはトリメリット酸、ピロメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸およびこれらの酸クロライド等が挙げられ、中でも1, 1, 1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、1, 1, 1-トリス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)エタンが好ましく、特に1, 1, 1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)エタンが好ましい。

かかる分岐ポリカーボネート樹脂を生ずる多官能性化合物を含む場合、かかる割合は、芳香族ポリカーボネート樹脂全量中、0.001~1モル%、好ましくは0.005~0.5モル%、特に好ましくは0.01~0.3モル%である。また特に溶融エステル交換法の場合、副反応として分岐構造が生ずる場合があるが、かかる分岐構造量についても、芳香族ポリカーボネート樹脂全量中、0.001~1モル%、好ましくは0.005~0.5モル%、特に好ましくは0.01~0.3モル%であるものが好ましい。なお、かかる割合については $^1\text{H-NMR}$ 測定により算出することが可能である。

界面重縮合法による反応は、通常二価フェノールとホスゲンとの反応であり、酸結合剤および有機溶媒の存在下に反応させる。酸結合剤としては、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物またはピリジン等のアミン化合物が用いられる。有機溶媒としては、例えば塩化メチレン、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素が用いられる。また、反応促進のために例えばトリエチルアミン、テトラ- n -ブチルアンモニウムブロマイド、テトラ- n -ブチルホスホニウムブロマイド等の第三級アミン、第四級アンモニウム化合物、第四級ホスホニウム化合物等の触媒を用いることもできる。その際、反応温度は通常0~40℃、反応時間は10分~5時間程度、反応中のpHは9以上に保つのが好ましい。

また、かかる重合反応において、通常末端停止剤が使用される。かかる末端停止剤として単官能フェノール類を使用することができる。単官能フェノール類は末端停止剤として分子量調節のために一般的に使用され、かかる単官能フェノール類としては、一般にはフェノールまたは低級アルキル置換フェノールであって、

5 下記一般式（１）で表される単官能フェノール類を示すことができる。

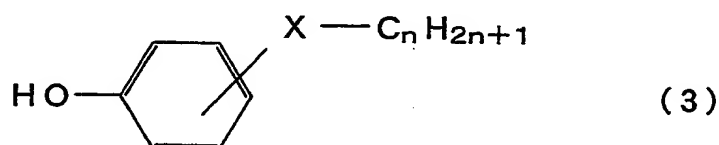
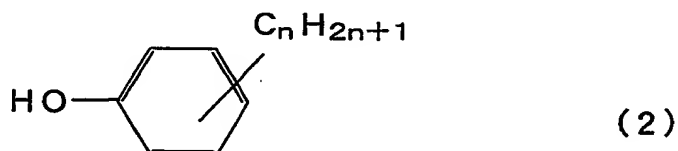


10

（式中、Aは水素原子または炭素数1～9の直鎖または分岐のアルキル基あるいはフェニル基置換アルキル基であり、rは1～5、好ましくは1～3の整数である。）

上記単官能フェノール類の具体例としては、例えばフェノール、p-tert-
15 ーブチルフェノール、p-クミルフェノールおよびイソオクチルフェノールが挙げられる。

また、他の単官能フェノール類としては、長鎖のアルキル基あるいは脂肪族ポリエステル基を置換基として有するフェノール類または安息香酸クロライド類、もしくは長鎖のアルキルカルボン酸クロライド類も示すことができる。これらの
20 なかでは、下記一般式（２）および（３）で表される長鎖のアルキル基を置換基として有するフェノール類が好ましく使用される。



(式中、Xは $-R-CO-O-$ または $-R-O-CO-$ である、ここでRは単結合または炭素数1～10、好ましくは1～5の二価の脂肪族炭化水素基を示し、nは10～50の整数を示す。)

かかる一般式(2)の置換フェノール類としてはnが10～30、特に10～26のものが好ましく、その具体例としては例えばデシルフェノール、ドデシルフェノール、テトラデシルフェノール、ヘキサデシルフェノール、オクタデシルフェノール、エイコシルフェノール、ドコシルフェノールおよびトリアコンチルフェノール等を挙げることができる。

また、一般式(3)の置換フェノール類としてはXが $-R-CO-O-$ であり、Rが単結合である化合物が適当であり、nが10～30、特に10～26のものが好適であって、その具体例としては例えばヒドロキシ安息香酸デシル、ヒドロキシ安息香酸ドデシル、ヒドロキシ安息香酸テトラデシル、ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシル、ヒドロキシ安息香酸エイコシル、ヒドロキシ安息香酸ドコシルおよびヒドロキシ安息香酸トリアコンチルが挙げられる。また、末端停止剤は単独でまたは2種以上混合して使用してもよい。

熔融エステル交換法による反応は、通常二価フェノールとカーボネートエステルとのエステル交換反応であり、不活性ガスの存在下に二価フェノールとカーボネートエステルとを加熱しながら混合して、生成するアルコールまたはフェノー

ルを留出させる方法により行われる。反応温度は生成するアルコールまたはフェノールの沸点等により異なるが、通常120～350℃の範囲である。反応後期には反応系を1.33×10³～13.3Pa程度に減圧して生成するアルコールまたはフェノールの留出を容易にさせる。反応時間は通常1～4時間程度である。

カーボネートエステルとしては、置換されていてもよい炭素数6～10のアリール基、アラルキル基あるいは炭素数1～4のアルキル基などのエステルが挙げられる。具体的にはジフェニルカーボネート、ビス(クロロフェニル)カーボネート、ジナフチルカーボネート、ビス(ジフェニル)カーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジブチルカーボネートなどが挙げられ、なかでもジフェニルカーボネートが好ましい。

また、重合速度を速めるために重合触媒を用いることができ、かかる重合触媒としては、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、二価フェノールのナトリウム塩、カリウム塩等のアルカリ金属化合物、水酸化カルシウム、水酸化バリウム、水酸化マグネシウム等のアルカリ土類金属化合物、テトラメチルアンモニウムヒドロキシド、テトラエチルアンモニウムヒドロキシド、トリメチルアミン、トリエチルアミン等の含窒素塩基性化合物、アルカリ金属やアルカリ土類金属のアルコキシド類、アルカリ金属やアルカリ土類金属の有機酸塩類、亜鉛化合物類、ホウ素化合物類、アルミニウム化合物類、珪素化合物類、ゲルマニウム化合物類、有機スズ化合物類、鉛化合物類、オスミウム化合物類、アンチモン化合物類、マンガン化合物類、チタン化合物類、ジルコニウム化合物類などの通常エステル化反応、エステル交換反応に使用される触媒を用いることができる。触媒は単独で使用してもよいし、2種以上を組み合わせ使用してもよい。これらの重合触媒の使用量は、原料の二価フェノール1モルに対し、好ましくは1×10⁻⁸～1×10⁻³当量、より好ましくは1×10⁻⁷～5×10⁻⁴当量の範囲で選ばれる。

また、かかる重合反応において、フェノール性の末端基を減少するために、重縮反応の後期あるいは終了後に、例えばビス(クロロフェニル)カーボネート、ビス(プロモフェニル)カーボネート、ビス(ニトロフェニル)カーボネート、

ビス（フェニルフェニル）カーボネート、クロロフェニルフェニルカーボネート、
プロモフェニルフェニルカーボネート、ニトロフェニルフェニルカーボネート、
フェニルフェニルカーボネート、メトキシカルボニルフェニルフェニルカーボネ
ートおよびエトキシカルボニルフェニルフェニルカーボネート等の化合物を加え
5 ることができる。なかでも２-クロロフェニルフェニルカーボネート、２-メト
キシカルボニルフェニルフェニルカーボネートおよび２-エトキシカルボニルフ
ェニルフェニルカーボネートが好ましく、特に２-メトキシカルボニルフェニル
フェニルカーボネートが好ましく使用される。

さらにかかる重合反応において触媒の活性を中和する失活剤を用いることが好
10 ましい。この失活剤の具体例としては、例えばベンゼンスルホン酸、p-トルエ
ンスルホン酸、ベンゼンスルホン酸メチル、ベンゼンスルホン酸エチル、ベンゼ
ンスルホン酸ブチル、ベンゼンスルホン酸オクチル、ベンゼンスルホン酸フェニ
ル、p-トルエンスルホン酸メチル、p-トルエンスルホン酸エチル、p-トル
エンスルホン酸ブチル、p-トルエンスルホン酸オクチル、p-トルエンスルホ
15 ン酸フェニルなどのスルホン酸エステル；さらに、トリフルオロメタンスルホン
酸、ナフタレンスルホン酸、スルホン化ポリスチレン、アクリル酸メチル-スル
ホン化スチレン共重合体、ドデシルベンゼンスルホン酸-２-フェニル-２-プ
ロピル、ドデシルベンゼンスルホン酸-２-フェニル-２-ブチル、オクチルス
ルホン酸テトラブチルホスホニウム塩、デシルスルホン酸テトラブチルホスホ
20 ニウム塩、ベンゼンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩、ドデシルベンゼン
スルホン酸テトラエチルホスホニウム塩、ドデシルベンゼンスルホン酸テトラブ
チルホスホニウム塩、ドデシルベンゼンスルホン酸テトラヘキシルホスホニウム塩、
ドデシルベンゼンスルホン酸テトラオクチルホスホニウム塩、デシルアンモニウ
ムブチルサルフェート、デシルアンモニウムデシルサルフェート、ドデシルアン
25 モニウムメチルサルフェート、ドデシルアンモニウムエチルサルフェート、ドデ
シルメチルアンモニウムメチルサルフェート、ドデシルジメチルアンモニウムテ
トラデシルサルフェート、テトラデシルジメチルアンモニウムメチルサルフェー
ト、テトラメチルアンモニウムヘキシルサルフェート、デシルトリメチルアンモ

ニウムヘキサデシルサルフェート、テトラブチルアンモニウムドデシルベンジルサルフェート、テトラエチルアンモニウムドデシルベンジルサルフェート、テトラメチルアンモニウムドデシルベンジルサルフェート等の化合物を挙げることができるが、これらに限定されない。これらの化合物を二種以上併用することもできる。

失活剤の中でもホスホニウム塩もしくはアンモニウム塩型のものが好ましい。かかる触媒の量としては、残存する触媒1モルに対して0.5～50モルの割合で用いるのが好ましく、また重合後のポリカーボネート樹脂に対し、0.01～500ppmの割合、より好ましくは0.01～300ppm、特に好ましくは0.01～100ppmの割合で使用する。

芳香族ポリカーボネート樹脂の分子量は特定されないが、B成分として使用する芳香族ポリカーボネート樹脂の場合は、分子量が14,000未満であると耐衝撃性等が低下し、40,000を超えると成形加工性が低下するようになるので、粘度平均分子量で表して14,000～40,000のものが好ましく、17,000～35,000のものが特に好ましい。また、分子量の異なる芳香族ポリカーボネート樹脂の2種以上を混合しても差し支えない。

本発明でいう粘度平均分子量は比粘度(η_{sp})を塩化メチレン100mlに芳香族ポリカーボネート樹脂0.7gを20℃で溶解した溶液からオストワルド粘度計を用いて求め、求められた比粘度(η_{sp})を次式にて挿入して粘度平均分子量Mを求める。

$$\eta_{sp}/c = [\eta] + 0.45 \times [\eta]^2 c$$

$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-4} M^{0.83}$$

$$c = 0.7$$

本発明のA成分およびC成分には、芳香族ポリカーボネート樹脂が前記範囲で含有されていることが必要であるが、他の熱可塑性樹脂が含有されていてもよい。その他の熱可塑性樹脂としては、特に限定されるものではないが、例えば、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂等の芳香族ポリエステル樹脂；ポリスチレン、AS樹脂、ABS樹脂、ASA樹脂、AES樹脂

等のスチレン系樹脂；が挙げられ、この他にポリアミド樹脂、アクリル樹脂、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂等のポリオレフィン樹脂等を例示することができる。さらに、ポリフェニルエーテル、ポリアセタール等のエンジニアリングプラスチック、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルイミド、ポリエーテルアミド、ポリサルフォン、ポリエーテルサルフォン、ポリフェニレンサルファイド等のいわゆるスーパーエンブラと呼ばれるものも挙げられる。

これらの他の熱可塑性樹脂として、スチレン系樹脂（A-2-P S成分またはC-2-P S成分）および芳香族ポリエステル樹脂（A-2-P E成分またはC-2-P E成分）が特に好適である。この芳香族ポリエステル樹脂としては、
10 ポリエチレンテレフタレート樹脂またはポリブチレンテレフタレート樹脂が好ましい。またスチレン系樹脂は、本発明において他の熱可塑性樹脂として特に好ましく、かつ具体的な化合物について以下に説明する。

本発明においてスチレン系樹脂（A-2-P S成分またはC-2-P S成分）とは、スチレン、 α -メチルスチレン、およびp-メチルスチレン等のスチレン
15 誘導体の単独重合体または共重合体、これらの単量体とアクリロニトリル、メチルメタクリレート等のビニルモノマーとの共重合体が挙げられる。さらにポリブタジエン等のジエン系ゴム、エチレン・プロピレン系ゴム、アクリル系ゴム、およびポリオルガノシロキサンゴム成分とポリアルキル（メタ）アクリレートゴム成分とが分離できないように相互に絡み合った構造を有している複合ゴム（以下
20 I P N型ゴム）等に、スチレンおよび／またはスチレン誘導体、またはスチレンおよび／またはスチレン誘導体と他のビニルモノマーをグラフト重合させたものが挙げられる。

かかるスチレン系樹脂の具体例としては、例えばポリスチレン、スチレン・ブタジエン・スチレン共重合体（S B S）、水添スチレン・ブタジエン・スチレン
25 共重合体（水添S B S）、水添スチレン・イソプレン・スチレン共重合体（水添S I S）、衝撃性ポリスチレン（H I P S）、アクリロニトリル・スチレン共重合体（A S樹脂）、アクリロニトリル・ブタジエン・スチレン共重合体（A B S樹脂）、メチルメタクリレート・ブタジエン・スチレン共重合体（M B S樹脂）、メ

チルメタクリレート・アクリロニトリル・ブタジエン・スチレン共重合体 (MA B S 樹脂)、アクリロニトリル・アクリルゴム・スチレン共重合体 (A A S 樹脂)、アクリロニトリル・エチレンプロピレン系ゴム・スチレン共重合体 (A E S 樹脂) およびスチレン・I P N 型ゴム共重合体等の樹脂、またはこれらの混合

5 物が挙げられる。

なお、かかるスチレン系樹脂はその製造時にメタロセン触媒等の触媒使用により、シンジオタクチックポリスチレン等の高い立体規則性を有するものであってもよい。さらに場合によっては、アニオンリビング重合、ラジカルリビング重合等の方法により得られる、分子量分布の狭い重合体および共重合体、ブロック共

10 重合体、および立体規則性の高い重合体、共重合体であってもよい。またポリカーボネート樹脂との相溶性改良等を目的として、かかるスチレン系樹脂に無水マレイン酸やN置換マレイミドといった官能基を持つ化合物が共重合されたものであってもよい。

これらの中でも、アクリロニトリル・スチレン共重合体 (A S 樹脂)、アクリ

15 ロニトリル・ブタジエン・スチレン共重合体 (A B S 樹脂) が好ましい。また、スチレン系樹脂を2種以上混合して使用することも可能である。

前記A S 樹脂とは、シアン化ビニル化合物と芳香族ビニル化合物を共重合した熱可塑性共重合体である。かかるシアン化ビニル化合物としては、特にアクリロニトリルが好ましく使用できる。また芳香族ビニル化合物としては、同様に前記

20 のものが挙げられるが、スチレンおよび α -メチルスチレンが好ましい。A S 樹脂中における各成分の割合としては、全体を100重量%とした場合、シアン化ビニル化合物が5~50重量%、好ましくは15~35重量%、芳香族ビニル化合物が95~50重量%、好ましくは85~65重量%である。さらにこれらのビニル化合物に、前記記載の共重合可能な他のビニル系化合物が共重合されたも

25 のでもよい。これらの含有割合は、A S 樹脂成分中15重量%以下であるものが好ましい。また反応で使用する開始剤、連鎖移動剤等は必要に応じて、従来公知の各種のものが使用可能である。

かかるA S 樹脂は塊状重合、懸濁重合、乳化重合のいずれの方法で製造された

ものでもよいが、好ましくは塊状重合によるものである。また共重合の方法も一段での共重合、または多段での共重合のいずれであってもよい。またかかるAS樹脂の還元粘度としては、 $0.2 \sim 1.0 \text{ dl/g}$ であり、好ましくは $0.3 \sim 0.5 \text{ dl/g}$ である。還元粘度は、AS樹脂 0.25 g を精秤し、ジメチルホルムアミド 50 ml に2時間かけて溶解させた溶液を、ウペローデ粘度計を用いて 30°C の条件で測定したものである。なお、粘度計は溶媒の流下時間が $20 \sim 100$ 秒のものを用いる。還元粘度は溶媒の流下秒数(t_0)と溶液の流下秒数(t)から次式によって求める。

$$\text{還元粘度 } (\eta_{sp}/C) = \{(t/t_0) - 1\} / 0.5$$

- 10 AS樹脂をバージン樹脂として再生樹脂組成物中に配合する場合には、AS樹脂全体 100 重量%中、アクリロニトリルが $15 \sim 35$ 重量%、スチレンが $85 \sim 65$ 重量%の範囲であり、塊状重合により製造され、その還元粘度が $0.3 \sim 0.5 \text{ dl/g}$ であるものを好ましく使用できる。

- ABS樹脂とは、ジエン系ゴム成分にシアン化ビニル化合物と芳香族ビニル化合物をグラフト重合した熱可塑性グラフト共重合体とシアン化ビニル化合物と芳香族ビニル化合物の共重合体との混合物である。このABS樹脂を形成するジエン系ゴム成分としては、例えばポリブタジエン、ポリイソプレンおよびスチレン-ブタジエン共重合体等のガラス転位温度が -10°C 以下のゴムが用いられ、その割合はABS樹脂成分 100 重量%中 $5 \sim 80$ 重量%であるのが好ましく、より好ましくは $8 \sim 50$ 重量%、特に好ましくは $10 \sim 30$ 重量%である。

- 25 ジエン系ゴム成分にグラフトされるシアン化ビニル化合物としては、特にアクリロニトリルが好ましい。またジエン系ゴム成分にグラフトされる芳香族ビニル化合物としては、同様に前記のものを使用できるが、特にスチレンおよび α -メチルスチレンが好ましい。かかるジエン系ゴム成分にグラフトされる成分の割合は、ABS樹脂成分 100 重量%中 $95 \sim 20$ 重量%が好ましく、特に好ましくは $50 \sim 90$ 重量%である。さらにかかるシアン化ビニル化合物および芳香族ビニル化合物の合計量 100 重量%に対して、シアン化ビニル化合物が $5 \sim 50$ 重量%、芳香族ビニル化合物が $95 \sim 50$ 重量%であることが好ましい。さらに上

記のジエン系ゴム成分にグラフトされる成分の一部についてメチル（メタ）アクリレート、エチルアクリレート、無水マレイン酸、N置換マレイミド等を混合使用することもでき、これらの含有割合はABS樹脂成分中15重量%以下であるものが好ましい。さらに反応で使用される開始剤、連鎖移動剤、乳化剤等は必要

5 に応じて、従来公知の各種のものが使用可能である。

前記ABS樹脂においては、ゴム粒子径は0.1～5.0 μm が好ましく、より好ましくは0.2～3.0 μm 、特に好ましくは0.3～1.5 μm である。かかるゴム粒子径の分布は単一の分布であるものおよび2山以上の複数の山を有するもののいずれもが使用可能であり、さらにそのモルフォロジーにおいても

10 ゴム粒子が単一の相をなすものであっても、ゴム粒子の周りにオクルード相を含有することによりサラミ構造を有するものであってもよい。

またABS樹脂がジエン系ゴム成分にグラフトされないシアン化ビニル化合物および芳香族ビニル化合物を含有することは従来からよく知られているところであり、ABS樹脂はかかる重合の際に発生するフリーの重合体成分を含有するも

15 ののであってもよい。かかるフリーのシアン化ビニル化合物および芳香族ビニル化合物からなる共重合体の還元粘度は、先に記載の方法で求めた還元粘度（30℃）が0.2～1.0 dl/g、より好ましくは0.3～0.7 dl/gであるものである。

またグラフトされたシアン化ビニル化合物および芳香族ビニル化合物の割合は

20 ジエン系ゴム成分に対して、グラフト率（重量%）で表して20～200%が好ましく、より好ましくは20～70%のものである。

かかるABS樹脂は塊状重合、懸濁重合、乳化重合のいずれの方法で製造されたものでもよいが、特に塊状重合によるものが好ましい。また共重合の方法も一段で共重合しても、多段で共重合してもよい。また、かかる製造法により得られ

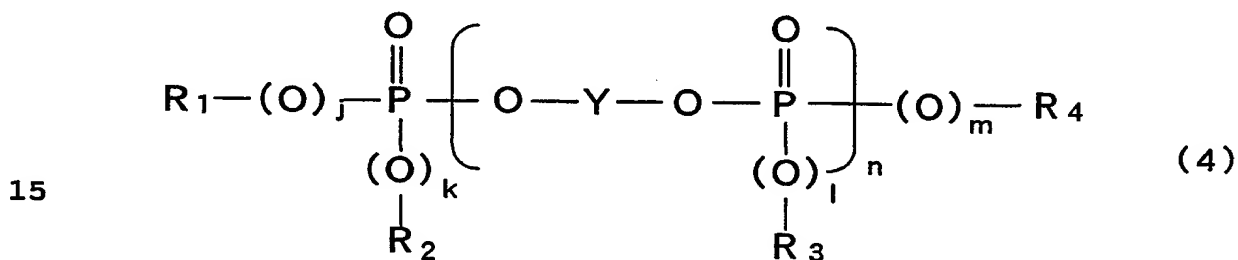
25 たABS樹脂に芳香族ビニル化合物とシアン化ビニル成分とを別途共重合して得られるビニル化合物重合体をブレンドしたのもでもよい。

ABS樹脂をバージン樹脂として再生樹脂組成物中に配合する場合には、ABS樹脂全体100重量%中、ジエン系ゴム成分が10～30重量%、およびジエ

ン系ゴム成分以外の成分100重量%中アクリロニトリルが15～35重量%、スチレンが85～65重量%の範囲であり、塊状重合により製造され、その還元粘度が0.3～0.7dl/gであるものを好ましく使用できる。

本発明において難燃剤（A-3成分またはC-3成分）としては、リン酸エステル、無機酸のアルカリ（土類）金属塩、有機酸のアルカリ（土類）金属塩、有機ハロゲン化合物、赤リン、有機シロキサン化合物、無機系リン酸塩、無機金属化合物の水和物などを挙げることができる。これらのうち、好ましいものはリン酸エステル、アルカリ（土類）金属塩、または有機シロキサン化合物である。

リン酸エステルとしては、下記一般式（4）で表される1種または2種以上のリン酸エステルを挙げることができる。



（但し上記式中のYは、ハイドロキノン、レゾルシノール、ビス（4-ヒドロキシジフェニル）メタン、ビスフェノールA、ジヒドロキシジフェニル、ジヒドロキシナフタレン、ビス（4-ヒドロキシフェニル）スルホン、ビス（4-ヒドロキシフェニル）ケトンまたはビス（4-ヒドロキシフェニル）サルファイドから誘導される2価の基が挙げられ、j、k、l、mはそれぞれ独立して0または1であり、nは0～5の整数であり、またはn数の異なるリン酸エステルの混合物の場合は0～5の平均値であり、R¹、R²、R³、およびR⁴はそれぞれ独立して1個以上のハロゲン原子を置換したもしくは置換していないフェノール、クレゾール、キシレノール、イソプロピルフェノール、ブチルフェノールまたはp-クミルフェノールから誘導される1価の基である。）

この中で好ましくは、上記式中のYは、ハイドロキノン、レゾルシノールまた

はビスフェノールAから誘導される基が挙げられ、j、k、l、mはそれぞれ1であり、nは0～3の整数であり、またはn数の異なるリン酸エステルのブレンドの場合は0～3の平均値であり、 R^1 、 R^2 、 R^3 、および R^4 はそれぞれ独立して1個以上のハロゲン原子を置換したもしくは置換していないフェノール、クレゾールまたはキシレノールから誘導される基である。

さらに、特に好ましくは、YはレゾルシノールまたはビスフェノールAから誘導される基であり、j、k、l、mはそれぞれ1であり、nは0または1であり、 R^1 、 R^2 、 R^3 、および R^4 はそれぞれ独立してフェノールまたはキシレノールから誘導される基である。

- 10 かかる有機リン酸エステル系難燃剤の中でも、モノホスフェート化合物としてはトリフェニルホスフェート、リン酸エステルオリゴマーとしてはレゾルシノールビス（ジキシレニルホスフェート）およびビスフェノールAビス（ジフェニルホスフェート）が、難燃性が良好で、かつ成形時の流動性が良好であり、さらに加水分解性が良好で長期の分解が少ないなどの理由により、A成分の成形品破砕物にバージン品として配合する場合に特に好ましく使用できる。

- 難燃剤としての無機酸のアルカリ（土類）金属塩におけるアルカリ金属としては、リチウム、ナトリウム、カリウムおよびセシウムなどが挙げられ、アルカリ（土類）金属としてはカルシウム、マグネシウムおよびバリウムなどが挙げられる。一方無機酸としては、 H_3AlF_6 、 H_3BF_6 、 H_3SbF_6 、 H_2TiF_6 、
20 H_2SiF_6 、 H_3PO_4 、 H_2ZrF_6 、 H_2WF_6 または HBf_4 などが挙げられる。好ましい無機アルカリ金属塩または無機アルカリ土類金属塩としては、 Na_3AlF_6 および $Ca_3(AlF_6)_2$ が挙げられる。

- 難燃剤としての有機酸のアルカリ（土類）金属塩におけるアルカリ金属としては、リチウム、ナトリウム、カリウムおよびセシウムなどが挙げられ、アルカリ（土類）金属としてはカルシウム、マグネシウムおよびバリウムなどが挙げられ
25 る。一方有機酸としては、有機酸としては、脂肪族スルホン酸、脂肪族硫酸エステル、芳香族スルホン酸、芳香族スルホンアミド、芳香族カルボン酸および脂肪族カルボン酸である。具体例としては、メチルスルホン酸、ラウリル硫酸エステ

- ル、ヘキサデシル硫酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル硫酸エステル、エチレングライコール、プロピレングライコール、ブタンジオールなどのモノまたはジ硫酸エステル、ペンタエリスリトールのモノ、ジ、トリまたはテトラ硫酸エステル、
- 5 ステアリン酸モノグリセライドモノ硫酸エステル、1, 3-ビス(2-エチルヘキシル)グリセリンエーテルモノ硫酸エステル、トリフルオロメタンスルホン酸、パーフルオロエタンスルホン酸、パーフルオロプロパンスルホン酸、パーフルオロブタンスルホン酸、パーフルオロメチルブタンスルホン酸、パーフルオロヘキサンスルホン酸、パーフルオロヘプタンスルホン酸、パーフルオロオクタンスル
- 10 ホン酸、ドデカンスルホン酸、ベンゼンスルホン酸、2, 5-ジクロロベンゼンスルホン酸、2, 4, 6-トリクロロベンゼンスルホン酸、2, 4, 5-トリクロロベンゼンスルホン酸、ジフェニルスルホン-3-スルホン酸、ジフェニルスルホン-3, 3'-ジスルホン酸、ナフタレントリスルホン酸、 β -ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物、N-(p-トリルスルホニル)-p-トルエンス
- 15 ルホイミド、N-(N'-ベンジルアミノカルボニル)スルファニルイミド、およびN-(フェニルカルボキシル)スルファニルイミド、カプリル酸、ラウリル酸、安息香酸、ナフトールカルボン酸および2, 4, 6-トリブロモ安息香酸などが挙げられる。好ましい有機アルカリ金属塩または有機アルカリ土類金属塩としては、パーフルオロブタンスルホン酸カリウム、パーフルオロブタンスルホン
- 20 酸カルシウム、パーフルオロブタンスルホン酸セシウム、ジフェニルスルホン-3-スルホン酸カリウム、ジフェニルスルホン-3, 3'-ジスルホン酸カリウム、 β -ナフタレンスルホン酸ナトリウムホルマリン縮合物およびN-(p-トリルスルホニル)-p-トルエンスルホイミドカリウムが挙げられる。

- 難燃剤としての有機ハロゲン化合物としては、例えばテトラブロモビスフェノールA (TBA) のカーボネートオリゴマー、デカブロモジフェニルエーテル、
- 25 オクタブロモジフェニルエーテル、テトラブロモジフェニルエーテル、ヘキサブロモシクロドデカン、エチレンビステトラブロモフタルイミド、トリス(ペンタブロモベンジル)イソシアヌレート、プロモ化ポリスチレン、TBAエポキシ樹

脂、テトラブロモフェノール末端TBAエポキシ樹脂等が挙げられる。

これらの中でも、テトラブロモビスフェノールAのカーボネートオリゴマーが、難燃性が良好であり燃焼時の有害物質の生成が少なく芳香族ポリカーボネート樹脂との相溶性が良く、耐衝撃性に代表される機械的特性を低下させることなく良好な難燃性が得られ、さらに長期の機械的特性の低下が少ない等の理由により、特にA成分に対してバージン品として配合する場合に好ましい有機ハロゲン化合物として挙げる事ができる。

難燃剤としての赤リンは、一般の赤リンの他に赤リン表面を熱硬化樹脂および／または無機材料を用いてマイクロカプセル化されている赤リンを挙げる事ができる。さらにA成分に対してバージン品として配合する場合には、安全性、作業性を良好とするためマスターペレット化したものが好ましく使用される。赤リンの平均粒径としては、1～100 μ m、好ましくは1～40 μ mのものを挙げる事ができる。マイクロカプセル化した赤リン系難燃剤の市販品としては、ノーバエクセル140、ノーバエクセルF-5（磷化学工業（株）製：商品名）、ヒシガードTP-10（日本化学工業（株）製：商品名）、ホスタフラムRP614（クラリアント・ジャパン（株）製：商品名）などが挙げられる。

難燃剤としての有機シロキサン化合物としては、下記一般式（5）で表わされる基本構造を有するものを挙げる事ができる。



一般式（5）において、 R^5 、 R^6 、および R^7 はそれぞれ炭素数1～12の炭化水素基を示し、例えば炭素数1～12のアルキル基、炭素数2～12のアルケニル基、炭素数6～12のアリール基、炭素数7～12のアリールアルキル基などが挙げられる。 R^5 および R^6 のそれぞれの置換基はそれぞれ同一でも異なってもよい。 R^8 は炭素数1～4のアルキル基を示す。

かかるアルキル基の具体例としてはメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、各種ブチル基、各種ヘキシル基、シクロヘキシ

- ル基などが、アルケニル基の具体例としては、ビニル基、アリル基、シクロヘキセニル基などが、アリール基の具体例としては、フェニル基、ナフチル基、トリル基などが、アリールアルキル基の具体例としては、ベンジル基、 β -フェネチル基、2-フェニルプロピル基などが挙げられる。これらの中で、特にフェニル
- 5 基、ビニル基およびメチル基がより有効な難燃性を発揮するため好ましく使用することができ、特にフェニル基を含有することが好ましい。かかるフェニル基は有機シロキサン中の有機基 (R^5 、 R^6 、 R^7 および R^8) のうち、少なくとも15モル%、好ましくは少なくとも20モル%、より好ましくは25~90モル%、特に好ましくは25~70モル%含有するものを使用することが好ましい。
- 10 さらに R^5 、 R^6 、および R^7 のいずれかをフェノール性水酸基含有一価有機基とし、かかる有機シロキサン化合物をポリカーボネート樹脂と共重合させたものも使用することが可能である。フェノール性水酸基含有一価有機基としては、例えば2-(*o*-ヒドロキシフェニル)エチル基、2-(*p*-ヒドロキシフェニル)エチル基、2-(*m*-ヒドロキシフェニル)エチル基、1-(*o*-ヒドロキシ
- 15 シフェニル)エチル基、1-(*p*-ヒドロキシフェニル)エチル基、1-(*m*-ヒドロキシフェニル)エチル基、3-(*o*-ヒドロキシフェニル)プロピル基、3-(*p*-ヒドロキシフェニル)プロピル基、3-(*m*-ヒドロキシフェニル)プロピル基、2-(*o*-ヒドロキシフェニル)プロピル基、2-(*p*-ヒドロキシフェニル)プロピル基および2-(*m*-ヒドロキシフェニル)プロピル基など
- 20 が挙げられる。
- 一般式(5)における a 、 b 、 c および d としては、 $0 \leq a \leq 0.75$ 、 $0 \leq b \leq 1$ 、 $0 \leq c \leq 0.5$ 、 $0 \leq d \leq 0.25$ および $(a+b+c+d)=1$ の関係を満たすものである。 e としては $(a+b+c+d)=1$ に対して $0 \leq e \leq 0.7$ を満たすものである。また c および d は同時に0ではない。さらに $0.5 \leq b$
- 25 ≤ 0.9 、 $0.1 \leq c \leq 0.5$ 、かつ $(b+c)$ が0.7以上であることが好ましい。また $(a+b+c+d)=1$ に対して $0.1 \leq e \leq 0.5$ であることが好ましい。

さらに前記有機シロキサン化合物としては、25℃における動粘度が1~10、

000 cSt (センチストークス)であることが好ましく、より好ましくは5~1, 000 cSt、さらに好ましくは5~300 cSt、特に好ましくは5~100 cStとなるものである。

また難燃剤として、ポリリン酸アンモニウム塩のような無機リン酸塩を使用することができ、さらに例えば水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、ドロマイト、ハイドロタルサイト、水酸化カルシウム、水酸化バリウム、塩基性炭酸マグネシウム、水酸化ジルコニウムおよび酸化スズの水和物のような無機金属水酸化物を使用することができる。

本発明における衝撃改良剤 (A-4成分またはC-4成分) は、ガラス転移温度が10℃以下、好ましくは-10℃以下、より好ましくは-30℃以下であるゴム重合体、または該ゴム重合体に共重合可能な成分が共重合しゴム重合体成分を40重量%以上含有するゴム重合体成分含有共重合体である。ゴム重合体としては、ポリブタジエン、ポリイソプレン、ジエン系共重合体 (例えば、スチレン・ブタジエンのランダム共重合体およびブロック共重合体、アクリロニトリル・ブタジエン共重合体、並びにアクリル・ブタジエンゴム (アクリル酸アルキルエステルまたはメタクリル酸アルキルエステルおよびブタジエンの共重合体) など)、エチレンと α -オレフィンとの共重合体 (例えば、エチレン・プロピレンランダム共重合体およびブロック共重合体、エチレン・ブテンのランダム共重合体およびブロック共重合体など)、エチレンと不飽和カルボン酸エステルとの共重合体 (例えばエチレン・メタクリレート共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体、およびエチレン・ブチルアクリレート共重合体など)、エチレンと脂肪族ビニルとの共重合体 (例えば、エチレン・酢酸ビニル共重合体など)、エチレンとプロピレンと非共役ジエンターポリマー (例えば、エチレン・プロピレン・ヘキサジエン共重合体など)、アクリルゴム (例えば、ポリブチルアクリレート、ポリ (2-エチルヘキシルアクリレート)、およびブチルアクリレートと2-エチルヘキシルアクリレートとの共重合体など)、並びにシリコーン系ゴム (例えば、ポリオルガノシロキサンゴム、ポリオルガノシロキサンゴム成分とアクリルゴム成分とからなるIPN型ゴム; すなわち2つのゴム成分が分離でき

ないように相互に絡み合った構造を有しているゴム、およびポリオルガノシロキサンゴム成分とポリイソプチレンゴム成分からなるIPN型ゴムなど）が挙げられる。なお、ポリオルガノシロキサンゴムとしてはポリジメチルシロキサンポリマーが好ましい。

- 5 かかるゴム成分に共重合される単量体成分としては、芳香族ビニル化合物、シアン化ビニル化合物、(メタ)アクリル酸エステル化合物、(メタ)アクリル酸化合物などが好適に挙げられる。その他の単量体成分としては、グリシジルメタクリレートなどのエポキシ基含有メタクリル酸エステル、マレイミド、N-メチルマレイミド、N-フェニルマレイミドなどのマレイミド系単量体、アクリル酸、
- 10 メタクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、フタル酸、イタコン酸などの α , β -不飽和カルボン酸およびその無水物等を挙げることができる。

- より具体的には、SB (スチレン-ブタジエン) 重合体、ABS (アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン) 重合体、MBS (メチルメタクリレート-ブタジエン-スチレン) 重合体、MABS (メチルメタクリレート-アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン) 重合体、MB (メチルメタクリレート-ブタジエン) 重合体、ASA (アクリロニトリル-スチレン-アクリルゴム) 重合体、AES (アクリロニトリル-エチレンプロピレンゴム-スチレン) 重合体、MA (メチルメタクリレート-アクリルゴム) 重合体、MAS (メチルメタクリレート-アクリルゴム-スチレン) 重合体、メチルメタクリレート-アクリル・ブタジエンゴム共重合体、メチルメタクリレート-アクリル・ブタジエンゴム-スチレン共重合体、メチルメタクリレート- (アクリル・シリコーンIPNゴム) 重合体などを挙げることができる。
- 15
- 20

- その他弾性重合体としては、スチレン系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系
- 25 熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマーなど各種の熱可塑性エラストマーが挙げられる。

本発明における樹脂組成物には、難燃性の改良のため滴下防止剤が含有されていてもよく、その滴下防止剤としては、フィブリル形成能を有する含フッ素ポリ

マーを挙げることができ、かかるポリマーとしてはポリテトラフルオロエチレン、テトラフルオロエチレン系共重合体（例えば、テトラフルオロエチレン／ヘキサフルオロプロピレン共重合体、など）、米国特許第4379910号公報に示されるような部分フッ素化ポリマー、フッ素化ジフェノールから製造されるポリカーボネート樹脂などを挙げることができるが、好ましくはポリテトラフルオロエチレンである。

フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンはASTM規格においてタイプ3に分類されているものである。さらにかかるフィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンは、1次粒子径が0.05～10 μ mの範囲のものが好ましく、2次粒子径が50～700 μ mのものが好ましい。かかるポリテトラフルオロエチレンはUL規格の垂直燃焼テストにおいて試験片の燃焼テスト時に熔融滴下防止性能を有しており、かかるフィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンは、例えば三井・デュポンフロロケミカル（株）よりテフロン6Jとして、またはダイキン工業（株）よりポリフロンとして市販されており容易に入手できる。

かかるポリテトラフルオロエチレン（以下PTFEと称することがある）をバージン品として使用する場合は、通常の固体形状の他、水性分散液形態のものも使用可能である。またかかるフィブリル形成能を有するPTFEは樹脂中での分散性を向上させ、さらに良好な難燃性および機械的特性を得るために以下の形態のPTFE混合物を使用することも可能である。

第1にPTFE分散液とビニル系重合体の分散体との共凝集混合物を挙げることができる。具体的には特開昭60-258263号公報に平均粒径0.05～5 μ mのPTFE分散液とビニル系重合体の分散液を混合し、30 μ mより大きいPTFE粒子を精製させることなく凝固させ、かかる凝固物を乾燥することによりPTFE混合物を得る方法が記載されており、かかる混合物の使用が可能である。

第2にPTFE分散液と乾燥したポリマー粒子とを混合した混合物を挙げることができ、かかるポリマー粒子としては各種のものが使用できるが、より好まし

くはポリカーボネート樹脂粉末またはABS樹脂粉末を使用したものである。かかる混合物については、特開平4-272957号公報にPTFE分散液とABS樹脂粉末との混合物について記載がされており、かかる方法の使用が可能である。

- 5 第3にPTFE分散液と熱可塑性樹脂溶液の混合物からそれぞれの媒体を同時に除去することにより得られたPTFE混合物を挙げることができ、具体的にはスプレードライヤーを使用することにより媒体を除去した混合物を挙げることができ、かかる混合物については特開平08-188653号公報に記載されている。
- 10 第4にPTFE分散液中で他のビニル系単量体を重合することにより得られたPTFE混合物を挙げることができ、かかる混合物については特開平9-95583号公報に、PTFEラテックス中にスチレンおよびアクリロニトリルを供給することによりPTFE混合物を得る方法が具体的に記載されており、かかる混合物等を使用することができる。
- 15 第5に、PTFE分散液とポリマー粒子分散液を混合後、さらに該混合分散液中でビニル系単量体を重合する方法を挙げることができ、かかる方法は製造の簡便性とPTFEの分散の微細化を両立できる点で好ましいPTFE混合物として挙げることができる。かかる混合物については特開平11-29679号にその詳細が記載されており、すなわち粒子径0.05~1.0 μ mのPTFE分散液
- 20 とポリマー粒子分散液とを混合した分散液中で、エチレン性不飽和結合を有する単量体を乳化重合した後、凝固またはスプレードライにより粉体化されたPTFE混合物を好ましいものとして挙げることができる。

- ここでポリマー粒子としては、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリスチレン、HIPS、AS樹脂、ABS樹脂、MBS樹脂、MABS樹脂、ASA樹脂、ポ
- 25 リアルキル（メタ）アクリレート、スチレンおよびブタジエンからなるブロック共重合体およびその水添共重合体、スチレンおよびイソプレンからなるブロック共重合体、およびその水添共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体、エチレン-プロピレンのランダム共重合体およびブロック共重合体、エチレン-

ブテンのランダム共重合体およびブロック共重合体、エチレンと α -オレフィンの共重合体、エチレン-ブチルアクリレート等のエチレン-不飽和カルボン酸エステルとの共重合体、アクリル酸エステル-ブタジエン共重合体、ポリオルガノシロキサンおよびポリアルキル(メタ)アクリレートを含む複合ゴム、さらにか
5 かる複合ゴムにスチレン、アクリロニトリル、ポリアルキルメタクリレート等のビニル系単量体をグラフトした共重合体等を挙げることができるが、なかでもポリアルキル(メタ)アクリレート、ポリスチレン、AS樹脂、ABS樹脂、ASA樹脂が好ましい。

一方、エチレン性不飽和結合を有する単量体としてはスチレン、p-メチルス
10 チレン、o-メチルスチレン、p-メトキシスチレン、o-メトキシスチレン、2,4-ジメチルスチレン、 α -メチルスチレン等のスチレン系単量体；アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸-2-エチルヘキシル、メタクリル酸-2-エチルヘキシル、アクリル酸ドデシル、メタクリル酸ドデシル、
15 アクリル酸シクロヘキシル、メタクリル酸シクロヘキシル等のアクリル酸エステル系単量体；アクリロニトリル、メタクリロニトリル等のシアン化ビニル系単量体；ビニルメチルエーテル、ビニルエチルエーテル等のビニルエーテル系単量体；酢酸ビニル、酪酸ビニル等のカルボン酸ビニル系単量体；エチレン、プロピレン、イソブチレン等のオレフィン単量体；ブタジエン、イソプレン、ジメチル
20 ブタジエン等のジエン系単量体等の中から選択することができる。これらの単量体は単独であるいは2種以上を混合して用いることができる。

上記の第4の形態のPTFE混合物としては、ジーエススペシャリティーケミカルズ社より「ブレンディックス449」(商品名)が、第5の形態のPTFE混合物としては、三菱レイヨン(株)より「メタブレンA3000」(商品名)
25 が市販されており、入手が容易であると共に、本発明において好ましく使用することができる。

滴下防止剤をバージン品として配合する場合の配合量としては、本発明の再生樹脂組成物100重量%中0.05~1重量%であることが好ましい。A成分中

にかかる滴下防止剤成分を含有する場合であっても、0.05重量%以下では目的とする滴下防止が不十分となりやすく、またかかる目的に対して上限としては1重量%あれば十分だからである。

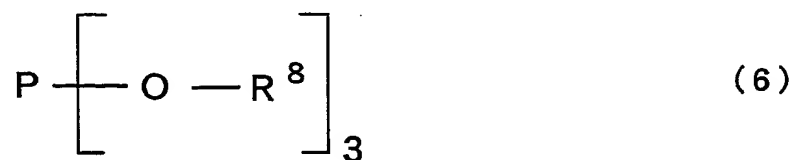
強化充填剤（A-5成分またはC-5成分）としては、タルク、マイカ、クレ
5 ー、ワラストナイト、モンモンリロナイト、スメクタイト、カオリン、炭酸カル
シウム、ガラス繊維、ガラスビーズ、ガラスパール、ミルドファイバー、ガラ
スフレーク、炭素繊維、炭素フレーク、カーボンビーズ、カーボンミルドファイ
バー、金属フレーク、金属繊維、金属コートガラス繊維、金属コート炭素繊維、
10 金属コートガラスフレーク、シリカ、セラミック粒子、セラミック繊維、セラミ
ックパール、アラミド粒子、アラミド繊維、ポリアリレート繊維、グラファイ
ト、導電性カーボンブラック、カーボンブラック、チタン酸カリウムウイスキー、
ホウ酸アルミニウムウイスキー、塩基性硫酸マグネシウムなどの各種ウイスキー
などが挙げられる。これらの強化充填剤は1種もしくは2種以上を併用して含む
ものであってもよい。

15 特に破碎および／または再生樹脂組成物を得る混練工程での強化充填剤の破壊
が少なく、安全性の高い微小フィラーであるタルクまたはワラストナイトを含む
場合が好ましく、特にタルクを含むものが好適である。バージン品として配合す
る場合は、タルクを使用することが好ましく、より純度の高いものがさらに好ま
しく使用される。

20 本発明の樹脂組成物においては、さらに各種の安定剤を含んでもよく、特
に各種のバージン品を混合し樹脂組成物を製造する場合に、各種の熱安定剤や酸
化防止剤をさらに配合させることが好ましい。

かかる熱安定剤としてはリン系熱安定剤が挙げられ、かかるリン系安定剤とし
ては、ホスファイト系、ホスホナイト系、およびホスフェート系のいずれも使用
25 可能である。

ホスファイト系安定剤としては、例えば一般式（6）



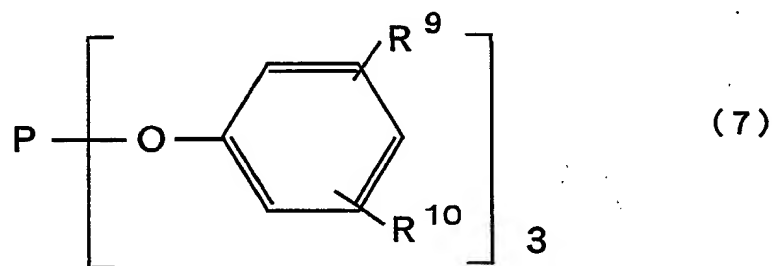
5

(式中 R^8 は、水素原子または炭素数1～20のアルキル基、炭素数6～20のアリール基ないしアルカリール基、炭素数7～30のアラルキル基、またはこれらのハロ、アルキルチオ(アルキル基は炭素数1～30)またはヒドロキシ置換基の置換体を示し、3つの R^8 は互いに同一、または互いに異なるいずれの場合も選択でき、また2価フェノール類から誘導されることにより環状構造も選択できる。)で表わされるホスファイト化合物である。

10

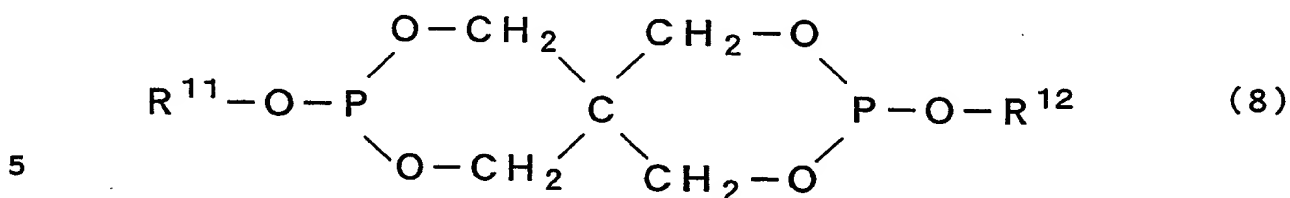
また、一般式(6)においてより好ましい態様としては、以下の一般式(7)

15



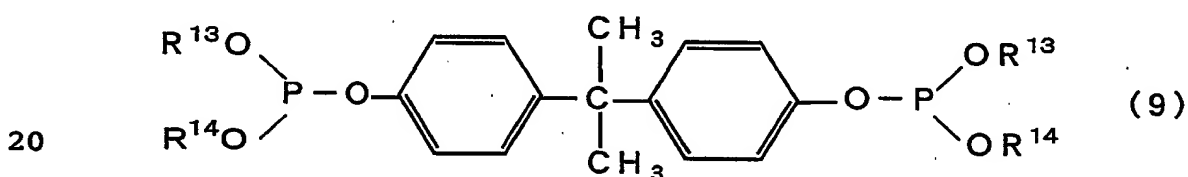
(式中 R^9 および R^{10} は、水素原子または炭素数1～20のアルキル基、炭素数6～20のアリール基ないしアルキルアリール基、炭素数7～30のアラルキル基を示し、 R^9 および R^{10} は同時に水素原子ではなく、互いに同一または互いに異なるいずれの場合も選択できる。)で表わされるホスファイト化合物を挙げる
ことができる。

25 また、一般式(8)



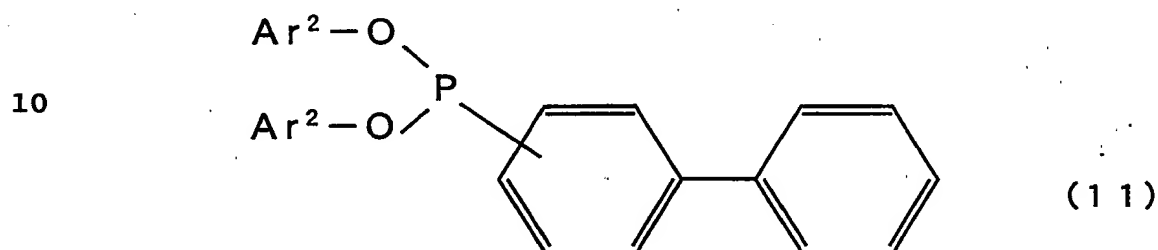
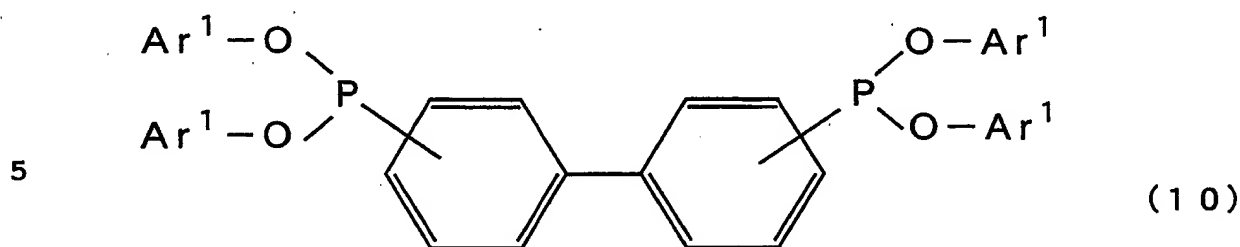
(式中 R^{11} 、 R^{12} はそれぞれ水素、炭素数1～20のアルキル基、炭素数6～20のアリール基ないしアルキルアリール基、炭素数7～30のアラルキル基、炭素数4～20のシクロアルキル基、炭素数15～25の2-(4-オキシフェニル)プロピル置換アリール基を示し、互いに同一または互いに異なるいずれの場合も選択できる。なお、シクロアルキル基およびアリール基は、アルキル基で置換されていないもの、またはアルキル基で置換されているもののいずれも選択できる。) で表わされるホスファイト化合物を挙げることができる。

15 また、一般式(9)



(式中 R^{13} および R^{14} は炭素数12～15のアルキル基である。なお、 R^{13} および R^{14} は互いに同一、または互いに異なるいずれの場合も選択できる。) で表わされるホスファイト化合物を挙げることができる。

ホスホナイト系安定剤としては下記一般式(10)で表わされるホスホナイト化合物、および下記一般式(11)で表わされるホスホナイト化合物を挙げることができる。



15 [式中、 Ar^1 および Ar^2 は炭素数6～20のアリール基ないしアルキルアリール基、または炭素数15～25の2-(4-オキシフェニル)プロピル置換アリール基を示し、4つの Ar^1 は互いに同一、または互いに異なるのいずれも選択できる。または2つの Ar^2 は互いに同一、または互いに異なるのいずれも選択できる。]

20 上記ホスファイト化合物およびホスホナイト化合物のうち、より好ましいリン系の安定剤として、上記一般式(7)で示されるホスファイト化合物、および上記一般式(10)および上記一般式(11)で示されるホスホナイト化合物を挙げることができる、これらは1種もしくは2種以上を併用することができ、より好ましくは上記一般式(7)で示されるホスファイト化合物をかかえるE成分100重量%中、少なくとも5重量%含む場合である。

25 上記一般式(6)に対応するホスファイト化合物における好ましい具体例としては、ジフェニルイソオクチルホスファイト、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェニル)オクチルホスファイト、ジフェニルモノ(トリデシル)ホスファイト、フェニルジイソデシルホスファイトおよびフェニルジ

(トリデシル) ホスファイトが挙げられる。より好ましい上記一般式 (7) に対応する好ましい具体例としては、トリフェニルホスファイト、トリス (ジメチルフェニル) ホスファイト、トリス (ジエチルフェニル) ホスファイト、トリス (ジ-*i*sopropylフェニル) ホスファイト、トリス (ジ-*n*-ブチルフェニル) ホスファイト、トリス (2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル) ホスファイト、トリス (2, 6-ジ-*tert*-ブチルフェニル) ホスファイト等があげられ、トリス (ジアルキル置換フェニル) ホスファイトが好ましく、トリス (ジ-*tert*-ブチルフェニル) ホスファイトがより好ましく、トリス (2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル) ホスファイトが特に好ましい。上記ホスファイト化合物は1種、または2種以上を併用することができる。

上記一般式 (8) に対応するホスファイト化合物における好ましい具体例としては、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、ビス (2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル) ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス (2, 6-ジ-*tert*-ブチル-4-メチルフェニル) ペンタエリスリトールジホスファイト、フェニルビスフェノールAペンタエリスリトールジホスファイト、ジシクロヘキシルペンタエリスリトールジホスファイトなどが挙げられ、好ましくはジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、ビス (2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル) ペンタエリスリトールジホスファイトおよびビス (2, 6-ジ-*tert*-ブチル-4-メチルフェニル) ペンタエリスリトールジホスファイトを挙げることができる。かかるホスファイト化合物は1種、または2種以上を併用することができる。

上記一般式 (9) に対応するホスファイト化合物における好ましい具体例としては、4, 4'-イソプロピリデンジフェノールジトリデシルホスファイトを挙げることができる。

上記一般式 (10) に対応するホスホナイト化合物における好ましい具体例としては、テトラキス (2, 4-ジ-*i*sopropylフェニル) -4, 4'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス (2, 4-ジ-*n*-ブチルフェニル) -4, 4'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス (2, 4-ジ-*tert*-

- ブチルフェニル) - 4, 4' - ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス (2, 4 - ジーtert - ブチルフェニル) - 4, 3' - ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス (2, 4 - ジーtert - ブチルフェニル) - 3, 3' - ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス (2, 6 - ジーiso - プロピルフェニル) - 4, 4' - ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス (2, 6 - ジーn - ブチルフェニル) - 4, 4' - ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス (2, 6 - ジーtert - ブチルフェニル) - 4, 4' - ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス (2, 6 - ジーtert - ブチルフェニル) - 4, 3' - ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス (2, 6 - ジーtert - ブチルフェニル) - 3, 3' -
- 10 ビフェニレンジホスホナイト等があげられ、テトラキス (ジーtert - ブチルフェニル) - ビフェニレンジホスホナイトが好ましく、テトラキス (2, 4 - ジーtert - ブチルフェニル) - ビフェニレンジホスホナイトがより好ましい。このテトラキス (2, 4 - ジーtert - ブチルフェニル) - ビフェニレンジホスホナイトは、2 種以上の混合物が好ましく、具体的にはテトラキス (2, 4 -
- 15 ジーtert - ブチルフェニル) - 4, 4' - ビフェニレンジホスホナイト (x 1 成分)、テトラキス (2, 4 - ジーtert - ブチルフェニル) - 4, 3' - ビフェニレンジホスホナイト (x 2 成分) および、テトラキス (2, 4 - ジーtert - ブチルフェニル) - 3, 3' - ビフェニレンジホスホナイト (x 3 成分) の 1 種もしくは 2 種以上を併用して使用可能であるが、好ましくは 3 種
- 20 の混合物である。また、3 種の混合物の場合その混合比は、x 1 成分、x 2 成分および x 3 成分を重量比で 100 : 37 ~ 64 : 4 ~ 14 の範囲が好ましく、100 : 40 ~ 60 : 5 ~ 11 の範囲がより好ましい。

上記一般式 (11) に対応するホスホナイト化合物の好ましい具体例としては、ビス (2, 4 - ジーiso - プロピルフェニル) - 4 - フェニル - フェニルホス

25 ホナイト、ビス (2, 4 - ジーn - ブチルフェニル) - 3 - フェニル - フェニルホスホナイト、ビス (2, 4 - ジーtert - ブチルフェニル) - 4 - フェニル - フェニルホスホナイト、ビス (2, 4 - ジーtert - ブチルフェニル) - 3 - フェニル - フェニルホスホナイト、ビス (2, 6 - ジーiso - プロピルフェニル) - 4 - フェニル - フェニルホスホナイト、ビス (2, 6 - ジーn - ブチルフェニル) - 4 - フェニル - フェニルホスホナイト、ビス (2, 6 - ジーtert - ブチルフェニル) - 4 - フェニル - フェニルホスホナイト、ビス (2, 6 - ジーtert - ブチルフェニル) - 3 - フェニル - フェニルホスホナイト

ル) - 4-フェニル-フェニルホスホナイト、ビス(2, 6-ジ-*n*-ブチルフェニル) - 3-フェニル-フェニルホスホナイト、ビス(2, 6-ジ-*tert*-ブチルフェニル) - 4-フェニル-フェニルホスホナイト、ビス(2, 6-ジ-*tert*-ブチルフェニル) - 3-フェニル-フェニルホスホナイト等があげられ、ビス(ジ-*tert*-ブチルフェニル) - フェニル-フェニルホスホナイトが好ましく、ビス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル) - フェニル-フェニルホスホナイトがより好ましい。このビス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル) - フェニル-フェニルホスホナイトは、2種以上の混合物が好ましく、具体的にはビス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル) - 4-フェニル-フェニルホスホナイトおよび、ビス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル) - 3-フェニル-フェニルホスホナイトの1種もしくは2種を併用して使用可能であるが、好ましくは2種の混合物である。また、2種の混合物の場合その混合比は、重量比で5 : 1 ~ 4の範囲が好ましく、5 : 2 ~ 3の範囲がより好ましい。

一方ホスフェート系安定剤としては、トリブチルホスフェート、トリメチルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクロルフェニルホスフェート、トリエチルホスフェート、ジフェニルクレジルホスフェート、ジフェニルモノオルソキセニルホスフェート、トリプトキシエチルホスフェート、ジブチルホスフェート、ジオクチルホスフェートおよびジイソプロピルホスフェートなどを挙げることができ、好ましくはトリメチルホスフェートである。

前記リン系熱安定剤は、1種もしくは2種以上を併用してよい。リン系熱安定剤は、本発明の再生樹脂組成物100重量%中、0.001 ~ 0.5重量%、より好ましくは0.005 ~ 0.3重量%の範囲で配合することが好ましい。

再生樹脂組成物を製造するに当たり各種の酸化防止剤をバージン品として配合し、機械的特性などの良好な再生樹脂組成物を得ることも適宜行うことができる。かかる酸化防止剤としては、例えばビタミンE、*n*-オクタデシル-β-(4'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-*tert*-ブチルフェル)プロピオネート、2-*tert*-ブチル-6-(3'-*tert*-ブチル-5'-メチル-2'-ヒ

- ドロキシベンジル) - 4-メチルフェニルアクリレート、2, 6-ジ-tert-
 -ブチル-4-(N, N-ジメチルアミノメチル) フェノール、3, 5-ジ-tert-
 -ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネートジエチルエステル、2,
 2'-メチレンビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、2,
 5 2'-メチレンビス(4-エチル-6-tert-ブチルフェノール)、4,
 4'-メチレンビス(2, 6-ジ-tert-ブチルフェノール)、2, 2'-
 メチレンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2, 2'-ジメ
 チレン-ビス(6- α -メチル-ベンジル-p-クレゾール) 2, 2'-エチリ
 デン-ビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェノール)、2, 2'-ブチリデ
 10 ン-ビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、4, 4'-ブチリ
 デンビス(3-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、トリエチレングリ
 コール-N-ビス-3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチル
 フェニル) プロピオネート、1, 6-ヘキサンジオールビス[3-(3, 5-ジ
 -tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート、ビス[2-tert-
 15 -tert-ブチル-4-メチル-6-(3-tert-ブチル-5-メチル-2-ヒ
 ドロキシベンジル) フェニル] テレフタレート、3, 9-ビス{2-[3-(3
 -tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル) プロピオニルオキシ
 シ]-1, 1, -ジメチルエチル}-2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ
 [5, 5] ウンデカン、4, 4-チオビス(6-tert-ブチル-m-クレゾ
 20 -ール)、4, 4'-チオビス(3-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、
 2, 2'-チオビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、ビス
 (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) スルフィド、4,
 4'-ジ-チオビス(2, 6-ジ-tert-ブチルフェノール)、4, 4'-
 トリ-チオビス(2, 6-ジ-tert-ブチルフェノール)、2, 4-ビス
 25 (n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブ
 チルアニリノ)-1, 3, 5-トリアジン、N, N'-ヘキサメチレンビス-
 (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロキシナミド)、N,
 N'-ビス[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)

プロピオニル] ヒドラジン、1, 1, 3-トリス (2-メチル-4-ヒドロキシ-5-tert-ブチルフェニル) ブタン、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) ベンゼン、トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) イソシアヌレート、トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) イソシアヌレート、1, 3, 5-トリス (4-tert-ブチル-3-ヒドロキシ-2, 6-ジメチルベンジル) イソシアヌレート、1, 3, 5-トリス 2 [3 (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオニル オキシ] エチルイソシアヌレート、テトラキス [メチレン-3-(3', 5'-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート] メタンなどを挙げる事ができる。これら酸化防止剤の好ましい添加量の範囲は、再生樹脂組成物100重量%中、0.0001~0.5重量%が好ましく、より好ましくは0.001~0.3重量%である。

さらに再生樹脂組成物を製造するに当たり各種の紫外線吸収剤をバージン品として適宜配合することができる。紫外線吸収剤としては、例えば2, 4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-n-オクトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-n-ドデシルオキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-ベンジロキシベンゾフェノン、2, 2'-ジヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシ-2'-カルボキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシ-5-スルホキシベンゾフェノン、2, 2'-ジヒドロキシ-4, 4'-ジメトキシベンゾフェノン、2, 2', 4, 4'-テトラヒドロキシベンゾフェノン、2, 2'-ジヒドロキシ-4, 4'-ジメトキシ-5-ソジウムスルホキシベンゾフェノンおよびビス (5-ベンゾイル-4-ヒドロキシ-2-メトキシフェニル) メタンなどに代表されるベンゾフェノン系紫外線吸収剤を挙げる事ができる。

また紫外線吸収剤としては例えば2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-tert-ブチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-tert-オ

- クチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-アミルフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-ドデシル-5'-メチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ビス(α , α' -ジメチルベンジル) フェニル) ベンゾトリアゾール、2-[2'-ヒドロキシ-3'-(3", 4", 5", 6"-テトラフタルイミドメチル)-5'-メチルフェニル] ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2, 2'メチレンビス[4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)-6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル) フェノール]、メチル-3-[3-tert-ブチル-5-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-ヒドロキシフェニル]プロピオネート-ポリエチレングリコールとの縮合物に代表されるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を挙げることができる。

- さらにビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル) セバケート、ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)-2-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2n-ブチルマロネート、1, 2, 3, 4-ブタンカルボン酸と2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジノールとトリデシルアルコールとの縮合物、1, 2, 3, 4-ブタンジカルボン酸と1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジノールとトリデシルアルコールとの縮合物、テトラキス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)-1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート、テトラキス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)-1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート、ポリ{[6-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル) アミノ-1, 3, 5-トリアジン-2, 4-ジイル][(2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジル) イミノ] ヘキサメチレン[(2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリ

リジル) イミノ}}、ポリ {[6-モルフォリノー s-トリアジン-2, 4-ジイル] [(2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジル) イミノ] ヘキサメチレン [(2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジル) イミノ}}、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸と2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジノールと
5 $\beta, \beta, \beta', \beta'$ -テトラメチル-3, 9-(2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ [5, 5] ウンデカン) ジエタノールとの縮合物、N, N'-ビス (3-アミノプロピル) エチレンジアミンと2, 4-ビス [N-ブチル-N-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル) アミノ] -クロロ-1, 3, 5-トリアジンとの縮合物、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸と1, 2,
10 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジノールと $\beta, \beta, \beta', \beta'$ -テトラメチル-3, 9-(2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ [5, 5] ウンデカン) ジエタノールとの縮合物、ポリメチルプロピル3-オキシ-[4-(2, 2, 6, 6-テトラメチル) ピペリジニル] シロキサンに代表されるヒンダードアミン系の光安定剤も配合することができる。これらは1種もしくは2種以上を併用
15 して使用することができる。これら紫外線吸収剤、光安定剤の好ましい添加量の範囲は、再生樹脂組成物100重量%中、0.0001~1重量%、好ましくは0.001~0.5重量%である。

また離型剤としては、オレフィン系ワックス、シリコーンオイル、オルガノポリシロキサン、一価または多価アルコールの高級脂肪酸エステル、パラフィンワ
20 ックス、蜜蝋等が挙げられる。

本発明の再生樹脂組成物は、成形品破砕物および芳香族ポリカーボネート樹脂を初めとする各種バージン品をタンブラー、V型ブレンダー、ナウターミキサー、ヘンシェルミキサー、パンバリーミキサー等の混合機によるブレンドや混練ロール、押出機等の加熱混練機による溶融混練にて製造することができる。また、成
25 形品破砕物をあらかじめ溶融混練し造粒化したのち、各種バージン品とブレンドまたは溶融混練する方法も適用できる。さらに各種バージン品をあらかじめ溶融混練したのち、破砕物および/または破砕物の溶融混練物とブレンドまたは溶融混練することもできる。溶融混練に際しての加熱温度は、通常220~340℃

の範囲で選ばれる。

かくして得られた再生樹脂組成物は、射出成形、射出圧縮成形、押出成形、圧縮成形、中空成形、カレンダー成形、ブロー成形、真空成形、回転成形等を適用して機械的強度、長期の機械的特性の必要とされる再生利用製品が好適に使用される電気・電子、OA機器等の幅広い用途に使用可能であり、有効なリサイクルを達成するものである。

発明の実施の形態

以下に実施例を挙げて本発明をさらに説明する。なお、実施例における%は重量%であり、評価は下記の方法によった。

(1) 評価項目

(a) 湿熱保持率：破砕物または再生樹脂組成物の成形品をプレッシャークッカー試験機（（株）平山製作所製超加速寿命試験装置（PC-305III/V））にて120℃、100% RH、2気圧の条件下で24時間、処理をして次式により求めた。

$$\text{湿熱保持率 (\%)} = (\text{湿熱処理後の粘度平均分子量} / \text{湿熱処理前の粘度平均分子量}) \times 100$$

(b) 初期曲げ強さ：ASTM D790により測定した。

(c) 初期衝撃値：ASTM D256によりアイゾットノッチ付き厚み3.2 mmの試験片を用い測定した。

(d) 初期難燃性：UL規格94Vに従い厚み1.6 mmの試験片を用い、燃焼試験を実施した。

(e) 長期促進曲げ強さ：ASTM D790の試験片を恒温恒湿試験機（タバイエスベック（株）製プラチナスF）にて、65℃、85% RHの条件下で1000時間処理をして同測定規格により測定した。

(f) 長期促進衝撃値：ASTM D256のアイゾットノッチ付き厚み3.2 mmの試験片を（e）と同一の条件下で1000時間処理をして、その後（c）初期衝撃値と同じ装置および切削刃を使用してノッチ入れの処理を

行い、同測定規格により測定した。

(g) 長期促進難燃性：UL規格94Vの厚み1.6mmの試験片を(e)と同一の条件下で1000時間処理をして同規格に従い燃焼試験を実施した。

(h) 衝撃値保持率：次式により求めた。衝撃値保持率は数値が高い方がよい。

$$5 \quad \text{衝撃値保持率 (\%)} = (\text{長期促進衝撃値} / \text{初期衝撃値}) \times 100$$

(2) 組成分析法

市場から回収された芳香族ポリカーボネート樹脂を含有する成形品破砕物については、以下の方法により組成分析を行った。以下の組成分析結果を表8および表9に示す。

10 (i) 主たる樹脂成分の分析

FT-IR法およびDSC法により主たる樹脂成分の分析を行った。

(ii) ヒドラジン分解による残渣量の分析

成形品破砕物を130℃で2時間ヒドラジン浸漬処理を行い、主としてポリカーボネート樹脂を分解し、ABS樹脂などの他の樹脂成分、顔料などの無機成分、

15 PTFEなどの滴下防止剤などの総量を算出した。

(iii) 灰化残渣量の分析

成形品破砕物を、電気炉を使用して600℃で3時間熱処理を行って灰化残渣量を算出し、顔料などの無機成分量を調べた。

(iv) ジエン系ゴム成分量の分析

20 成形品破砕物中にジエン系ゴム成分が認められた場合は、一塩化ヨウ素法によりその量を算出した。

(v) ジエン系ゴム成分などのモノマーの特定

上記(ii)におけるヒドラジン分解残渣を、さらに590℃での熱分解ガスクロマトグラフィー質量分析測定し、ABS樹脂やMBS樹脂などに由来するモノ

25 ノマー成分を特定した。

(vi) 無機成分などの観察

上記(ii)または(iii)で得られた残渣より、無機成分などのおよその内容を顕微鏡観察などにより特定した。

(v i i) リン酸エステルの特定制および含有量の特定制

難燃剤としてリン酸エステル成分が含まれている場合には、 $^1\text{H-NMR}$ 測定および蛍光X線測定により、その構造の特定制、およびおよその含有量の特定制を行った。

5 (v i i i) P T F E量の測定

成形品破砕物についてイオンクロマトグラフィー法によりすべてが滴下防止剤のP T F Eであると仮定してそのおよその含有量を求めた（なお、P T F Eが含有されることは、ヒドラジン分解残渣のD S C測定により確認した）。

(i x) ハロゲン系化合物の有無の分析

- 10 成形品についてバイルシュタイン法、蛍光X線測定により臭素化合物の有無を確認した。

(x) 臭素化合物量の測定

成形品について燃焼イオンクロマトグラフィー法により臭素の量を求めた。対応する臭素化合物の臭素含有率より臭素化合物の量を求めた。

15 (x i) ポリカーボネートとポリエステルとの割合

$^1\text{H-NMR}$ の測定を行い対応するピーク強度面積比からそれらの比率を算出した。比較は、ポリカーボネート樹脂のメチル基に由来するピークとポリエステル樹脂のメチレン基に由来するピークで行った。

実施例 1 および比較例 1

- 20 表 1 に示す組成で破砕物モデル、ポリカーボネート樹脂、スチレン系樹脂、難燃剤、衝撃改質剤、滴下防止剤を混合し、径 30 mm ϕ のベント式二軸押出機（日本製鋼所製；TEX 30 X S S T）に投入し、シリンダー温度 260℃で熔融押出してペレット化した。得られたペレットを 100℃で 5 時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機（住友重機械工業製；SG 150 U）によりシリンダー温度 260℃、金型温度 60℃で評価用の試験片を得た。評価結果を表 1 に示した。

実施例 2 および比較例 2

表 1 に示す組成で破砕物モデル、ポリカーボネート樹脂、滴下防止剤を混合し、

径30mmφのベント式二軸押出機（日本製鋼所製；TEX30XSST）に投入し、シリンダー温度280℃で熔融押出してペレット化した。得られたペレットを120℃で5時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機（住友重機械工業製；SG150U）によりシリンダー温度290℃、金型温度70℃で評価

5 用の試験片を得た。評価結果を表1に示した。

表1

	成分	単位	実施例1	比較例1	実施例2	比較例2
配合組成	破砕物	MS-1	%	—	30	—
		MS-2	%	30	—	—
		MS-3	%	—	—	50
		MS-4	%	—	—	50
	ポリカーボネート樹脂	PC-1	%	48.3	48.3	—
		PC-2	%	—	—	49.8
	スチレン系樹脂	ST-1	%	11	11	—
	衝撃改質剤	MD-1	%	3.5	3.5	—
	難燃剤	FR-4	%	7	7	—
	滴下防止剤	PTFE	%	0.2	0.2	0.2
特性	初期曲げ強さ		MPa	92	92	93
	初期衝撃値		J/m	432	330	685
	初期難燃性		—	V-0	V-1	V-0
	長期促進曲げ強さ		MPa	90	89	92
	長期促進衝撃値		J/m	347	43	610
	長期促進難燃性		—	V-0	not-V	V-1
	衝撃値保持率		%	80	13	87

10 実施例3および比較例3

表2に示す組成で破砕物モデル、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、難燃剤、衝撃改質剤、滴下防止剤およびその他の成分を混合し、径30mmφのベント式二軸押出機（日本製鋼所製；TEX30XSST）に投入し、シリンダー温度280℃で熔融押出してペレット化した。得られたペレットを105℃で

15 5時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機（住友重機械工業製；SG150U）によりシリンダー温度270℃、金型温度70℃で評価用の試験片を得

た。評価結果を表 2 に示した。

表 2

		成分	単位	実施例3	比較例3
配組 合 成	破砕物	MS-5	%	—	30
		MS-6	%	30	—
	ポリカーボネート樹脂	PC-1	%	43.8	43.8
	ポリエステル樹脂	PET	%	11.7	11.7
		PBT	%	0.7	0.7
	衝撃改質剤	SIS	%	3	3
	難燃剤	FR-4	%	6.5	6.5
	滴下防止剤	PTFE	%	0.2	0.2
	その他	COMP	%	4	4
		S-1	%	0.1	0.1
特 性	初期曲げ強さ		MPa	90	88
	初期衝撃値		J/m	630	390
	初期難燃性		—	V-0	V-0
	長期促進曲げ強さ		MPa	89	85
	長期促進衝撃値		J/m	498	120
	長期促進難燃性		—	V-0	not-V
	衝撃値保持率		%	79	31

5

実施例 4～7 および比較例 4～7

表 3 に示す組成で破砕物モデルまたは破砕物モデルの繰り返し再生品、ポリカーボネート樹脂、スチレン系樹脂、難燃剤、衝撃改質剤、強化剤、滴下防止剤を混合し、径 30 mm φ のベント式二軸押出機（日本製鋼所製；TEX 30 X S S T）に投入し、シリンダー温度 260℃ で熔融押出してペレット化した。得られたペレットを 100℃ で 5 時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機（住友重機械工業製；SG 150 U）によりシリンダー温度 260℃、金型温度 60℃ で評価用の試験片を得た。評価結果を表 3 に示した。

10

表 3

配組	合成	成分	単位	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	
				実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	
配組	合成	破砕物	MS-1	%	—	—	—	—	20	—	—	—
			MS-1-1	%	—	—	—	—	—	20	—	—
			MS-1-2	%	—	—	—	—	—	—	20	—
			MS-1-3	%	—	—	—	—	—	—	—	20
			MS-2	%	20	—	—	—	—	—	—	—
			MS-2-1	%	—	20	—	—	—	—	—	—
			MS-2-2	%	—	—	20	—	—	—	—	—
			MS-2-3	%	—	—	—	20	—	—	—	—
			ポリカーボネート樹脂	%	53.36	53.36	53.36	53.36	—	—	—	—
		スチレン系樹脂	PC-2	%	—	—	—	—	54.96	54.96	54.96	54.96
			ST-1	%	12.8	12.8	12.8	12.8	12.8	12.8	12.8	12.8
			MD-1	%	4	4	4	4	4	4	4	4
			FR-4	%	8	8	8	8	8	8	8	8
			難燃剤	%	1.6	1.6	1.6	1.6	—	—	—	—
			強化剤	%	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24
特性	性能	滴下防止剤	%	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24	
		初期曲げ強さ	MPa	92	92	91	91	92	90	90	90	
		初期衝撃値	J/m	443	442	437	433	338	320	311	302	
		初期難燃性	—	V-0	V-0	V-0	V-0	V-1	V-1	V-1	V-1	
		長期促進曲げ強さ	MPa	91	91	91	90	89	88	88	87	
特性	性能	長期促進衝撃値	J/m	368	362	354	346	47	38	31	27	
		長期促進難燃性	—	V-0	V-0	V-0	V-0	V-1	not-V	not-V	not-V	
		衝撃値保持率	%	82	82	81	80	14	12	10	9	

比較例 8

表 4 に示す組成で破砕物、ポリカーボネート樹脂を混合し、径 30 mm φ のベント式二軸押出機（日本製鋼所製；TEX 30 X S S T）に投入し、シリンダー温度 290℃ で熔融押出してペレット化した。得られたペレットを 120℃ で 5 時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機（住友重機械工業製；SG 150 U）によりシリンダー温度 290℃、金型温度 70℃ で評価用の試験片を得た。評価結果を表 4 に示した。

比較例 9

表 4 に示す組成で破砕物、ポリカーボネート樹脂、難燃剤を混合し、径 30 mm φ のベント式二軸押出機（日本製鋼所製；TEX 30 X S S T）に投入し、シリンダー温度 250℃ で熔融押出してペレット化した。得られたペレットを 100℃ で 5 時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機（住友重機械工業製；SG 150 U）によりシリンダー温度 250℃、金型温度 60℃ で評価用の試験片を得た。評価結果を表 4 に示した。

15

表 4

	成分		単位	比較例 8	比較例 9
配合組成	破砕物	RE-1	%	20	20
	ポリカーボネート樹脂	PC-1	%	80	71.8
	難燃剤	FR-1	%	—	8
	滴下防止剤	PTFE	%	—	0.2
特性	初期曲げ強さ		MPa	89	83
	初期衝撃値		J/m	205	69
	初期難燃性		—	—	V-0
	長期促進曲げ強さ		MPa	90	80
	長期促進衝撃値		J/m	92	33
	長期促進難燃性		—	—	V-2
	衝撃値保持率		%	45	48

実施例 8～17、比較例 10～15

- 表 5、6 に示す組成で破砕物、ポリカーボネート樹脂、スチレン系樹脂、難燃剤、衝撃改質剤、強化剤、滴下防止剤およびこれらの合計 100 重量部に対して、滑剤および離型剤として脂肪酸アルキルワックスとトリグリセライドの混合物
- 5 (混合比(重量) = 70 : 30) である SL-900 (理研ビタミン製) 0.6 重量部を配合し、径 30 mm φ のペント式二軸押出機 (日本製鋼所製 ; TEX 30 X S S T) に投入し、シリンダー温度 250 °C で熔融押出してペレット化した。得られたペレットを 100 °C で 5 時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機 (住友重機械工業製 ; SG 150 U) によりシリンダー温度 250 °C、金型温度 60 °C で評価用の試験片を得た。評価結果を表 5 および表 6 に示した。
- 10

表 5

	成分	単位	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	実施例17	
配 合 組 成	破 碎 物	RE-2	30	30	—	—	—	—	—	—	—	—	
		RE-3	—	—	20	40	20	20	40	20	30	20	
		RE-4	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
		RE-5	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	ポリカーボネート樹脂	PC-1	70	58.8	80	60	54.56	52.64	39.48	52.76	50.7	52.64	
		ST-1	—	—	—	—	14.4	12	9	10	10	12	
		FR-1	—	—	—	—	—	—	—	—	6	—	
		FR-2	—	8	—	—	8	8	6	8	—	—	
	難燃剤	FR-3	—	—	—	—	—	—	—	—	—	8	
		MD-1	—	3	—	—	2.8	3.12	2.34	—	—	—	
MD-2		—	—	—	—	—	—	—	5	3	—		
MD-3		—	—	—	—	—	—	—	—	—	3.12		
強化剤	TD	—	—	—	—	—	—	4	3	4	—	4	
	滴下防止剤	—	—	—	—	—	0.24	0.24	0.18	0.24	0.3	0.24	
	特性	初期曲げ強さ	87	86	89	87	90	90	90	90	89	88	90
		初期衝撃値	433	458	460	398	310	320	318	334	310	310	312
初期難燃性		—	V-0	—	—	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	
長期促進曲げ強さ		79	80	90	88	90	90	91	90	88	88	91	
長期促進衝撃値	332	307	330	265	202	245	242	257	192	192	243		
長期促進燃焼性	—	V-0	—	—	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	
衝撃値保持率	77	67	72	67	65	77	76	77	77	63	78		

表 6

	成分	単位	比較例10	比較例11	比較例12	比較例13	比較例14	比較例15
配合組成	破砕物	%	—	—	—	—	—	—
		%	—	—	—	—	—	—
		%	10	20	20	—	—	—
		%	—	—	—	20	40	100
特性	ポリカーボネート樹脂	%	90	80	54. 56	54. 56	60	—
	スチレン系樹脂	%	—	—	14. 4	14. 4	—	—
	難燃剤	%	—	—	—	—	—	—
		%	—	—	8	8	—	—
		%	—	—	—	—	—	—
	衝撃改質剤	%	—	—	2. 8	2. 8	—	—
		%	—	—	—	—	—	—
		%	—	—	—	—	—	—
	強化剤	%	—	—	—	—	—	—
		%	—	—	0. 24	0. 24	—	—
	滴下防止剤	MPa	88	87	89	84	81	75
		J/m	450	434	278	198	166	54
特性	初期曲げ強さ	—	—	—	V-0	V-0	—	HB
	初期衝撃値	MPa	83	82	86	78	71	60
	初期難燃性	J/m	45	39	68	61	39	13
	長期促進曲げ強さ	—	—	—	V-1	V-1	—	HB
	長期促進衝撃値	%	10	9	24	31	23	24

実施例 18、19

表7に示す組成および供給方法で、成形品破砕物、芳香族ポリカーボネート樹脂、スチレン系樹脂ペレット、衝撃改質剤、難燃剤、強化材、滴下防止剤、着色剤を押出機を用いてストランド押出し、水槽で冷却した後、ストランドカッター

5 により造粒してペレットを得た。得られたペレットは100℃で5時間、熱風乾燥機を用いて乾燥後、射出成形機（住友重機械工業製；SG-150U）によりシリンダー温度250℃、金型温度60℃で所定の評価用試験片を得た。

押出機に供給した材料の組成および評価結果を表7に、成形品破砕物の組成分析結果を表9に示した。

- 10 なお、押出機の混練条件は以下のとおりとした。押出機として径30mmφのベント付2軸押出機（日本製鋼所製；TEX30XSST）を使用した。第1供給口上部に2軸スクリューを有する原料供給装置であるカセットウェイングフィーダー（CWF-1）（久保田鉄工製；CE-T-1 0S01）を1台設置した。押出機途中の第2供給口には2軸スクリューを有するサイドフィーダーを接続
- 15 し、さらにサイドフィーダー上部には2軸スクリューを有する原料供給装置であるカセットウェイングフィーダー（CWF-2、CWF-3）を2台設置した。各カセットウェイングフィーダーには供給制御装置に接続し供給量を設定した。また排出量の合計は20,000g/hrに設定した。押出温度は第1供給口からサイドフィーダーまでの区間を250℃、それ以降の区間を225℃とした。
- 20 またスクリュー回転数180rpm、ベントの真空度3kPaで行った。

実施例 20

- 表7に示す組成および供給方法で、破砕物、ポリカーボネート樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂ペレット（120℃で5時間熱風乾燥処理したもの）、衝撃改質剤、難燃剤、滴下防止剤を、シリンダ温度を押出温度は第1供給口から
- 25 サイドフィーダーまでの区間を260℃、それ以降の区間を245℃とした以外は実施例18と同様の条件で押出を行い、ペレットを得た。得られたペレットを、120℃で5時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥後、射出成形機（住友重機械工業製；SG-150U）により、シリンダー温度260℃、金型温度60℃で評価

用の試験片を得た。押出機に供給した材料の組成および評価結果を表 7 に、成形品破砕物の組成分析結果を表 9 に示した。

表 7

5

原料の供給方法		成分		単位	実施例		
供給口	供給装置				18	19	20
第1供給口	CWF-1	ポリカーボネート樹脂 PC-1		%	44.8	39.3	26.8
		衝撃改質剤	MD-1	%	4	-	5
			MD-2	%	-	3.5	-
		難燃剤	FR-2	%	8	-	-
			FR-3	%	-	7	-
			FR-5	%	-	-	10
		強化材	TD	%	4	-	-
		滴下防止剤	PTFE	%	0.2	0.2	0.2
		着色剤マスター	DC-1	%	3	-	-
DC-2	%		-	2	-		
第2供給口	CWF-2	破砕物	RE-6	%	20	-	-
			RE-7	%	-	30	-
			RE-8	%	-	-	40
	CWF-3	スチレン系樹脂	ST-1	%	16	18	-
		ポリエステル樹脂	PET	%	-	-	18
特性		初期曲げ強さ		MPa	90	88	90
		初期衝撃値		J/m	318	322	610
		初期難燃性		-	V-O	V-O	V-O
		長期促進曲げ強さ		MPa	90	89	89
		長期促進衝撃値		J/m	245	219	476
		長期促進燃焼性		-	V-O	V-O	V-O
		衝撃値保持率		%	77	68	78

上記表 1～9 における破砕物、樹脂、難燃剤、添加剤の記号は下記のものを示す。

(ポリカーボネート樹脂を含有する成形品破砕物のモデル)

- 10 MS-1 : 下記に符号 PC-2 として示すポリカーボネート樹脂 68.7 重量%と、リン酸エステルとして大八化学工業製 ; CR-733S (リン酸エステルオ

- リゴマー) 10重量%を均一に混合した後、下記に符号ST-1として示すABS樹脂16重量%、MD-1として示すゴム弾性体5重量%およびPTFEとして示す滴下防止剤0.3重量%を均一に混合して、径30mmφのベント式二軸押出機(日本製鋼所製; TEX30XSST)に投入し、シリンダー温度260℃で溶融押出してペレット化した。得られたペレットを100℃で5時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機(住友重機械工業製; SG150U)によりシリンダー温度260℃、金型温度60℃の条件で一辺150mmおよび厚み3mmの評価用の成形品を得た。その後かかる成形品を恒温恒湿試験機(タバイエスベック製; プラチナスF)にて、65℃、85%RHの条件下で1000時間放置処理し、湿熱環境下での促進劣化成形品を得た。その後かかる処理成形品を粉碎機(朋来鉄工所製; SB-210)にて、70kg/hの処理能力で破碎し、V型ブレンダーにて均一にブレンドし成形品破碎物のモデル(MS-1)を得た。MS-1の粘度平均分子量は21,500、および湿熱保持率は55%であった。
- 15 MS-2: MS-1において、PC-2として示すポリカーボネート樹脂68.7重量%の代わりに、下記に符号PC-1として示すポリカーボネート樹脂66.7重量%およびTD2重量%とした以外は、MS-1と同様に成形、湿熱処理および破碎して成形品破碎物のモデル(MS-2)を得た。MS-2の粘度平均分子量は21,800、および湿熱保持率は86%であった。
- 20 MS-3: 下記に符号PC-2として示すポリカーボネート樹脂95.3重量%と、シリコン系難燃剤(東芝シリコーン製; XC99-B5664)4重量%、N-(p-トリルスルホニル)-p-トルエンスルホイミドのカリウム塩0.4重量%およびPTFE(滴下防止剤)0.3重量%を均一に混合した後、径30mmφのベント式二軸押出機(日本製鋼所製; TEX30XSST)に投入し、
- 25 シリンダー温度290℃で溶融押出してペレット化した。得られたペレットを120℃で5時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機(住友重機械工業製; SG150U)によりシリンダー温度290℃、金型温度80℃の条件で一辺150mm、厚み3mmの評価用の成形品を得た。その後かかる成形品を恒温

恒湿試験機（タバイエスペック製；プラチナスF）にて、65℃、85%RHの条件下で1000時間放置処理し、湿熱環境下での促進劣化成形品を得た。その後かかる処理成形品を粉碎機（朋来鉄工所製；SB-210）にて、70kg/hの処理能力で破碎し、V型ブレンダーにて均一にブレンドし成形品破碎物のモデル（MS-3）を得た。MS-3の粘度平均分子量は21,800、および湿熱保持率は58%であった。

MS-4：下記に示す符号PC-1（ポリカーボネート樹脂）97.64重量%、シリコン系難燃剤（信越化学工業製；X-40-9243）2重量%、アルカリ金属塩系難燃剤（大日本インキ化学工業製；メガファックF-114P）0.01重量%、PTFE（滴下防止剤）0.3重量%、S-1（ホスファイト系抗酸化剤）0.05重量%をMS-3と同様の方法で成形、湿熱処理および破碎して成形品破碎物のモデル（MS-4）を得た。MS-4の粘度平均分子量は19,100、および湿熱保持率は88%であった。

MS-5：下記に示す符号PC-2（ポリカーボネート樹脂）62.6重量%、PET（ポリエチレンテレフタレート樹脂）16.7重量%、PBT（ポリブチレンテレフタレート樹脂）1重量%、SIS（スチレン系エラストマー）4.2重量%、COMP（ポリエステルスチレン系エラストマー共重合体含有添加剤）5.8重量%、FR-4（難燃剤）9.2重量%、PTFE（滴下防止剤）0.4重量%、およびS-1（安定剤）0.1重量%を均一に混合した後、径30mmφのペント式二軸押出機（日本製鋼所製；TEX30XSST）に投入し、シリンダー温度290℃で熔融押出してペレット化した。得られたペレットを105℃で5時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機（住友重機械工業製；SG150U）によりシリンダー温度270℃、金型温度70℃の条件で一边150mm、厚み3mmの評価用の成形品を得た。その後かかる成形品を恒温恒湿試験機（タバイエスペック製；プラチナスF）にて、65℃、85%RHの条件下で1000時間放置処理し、湿熱環境下での促進劣化成形品を得た。その後かかる処理成形品を粉碎機（朋来鉄工所製；SB-210）にて、70kg/hの処理能力で破碎し、V型ブレンダーにて均一にブレンドし成形品破碎物のモ

デル (MS-5) を得た。MS-5 の粘度平均分子量は、14,300 および湿熱保持率は53%であった。

MS-6 : MS-5 において、PC-2 に換えてPC-1 を使用し、さらにFR-4 (難燃剤) 9.2 重量% に代えて、FR-3 (難燃剤) 8.4 重量% および
5 TD0.8 重量% を使用した以外は、MS-5 と同様に成形、湿熱処理および破碎して成形品破碎物のモデル (MS-6) を得た。MS-6 の粘度平均分子量は18,400、および湿熱保持率は84%であった。

(ポリカーボネート樹脂を含有する成形品破碎物モデルの繰り返し再生破碎物)

MS-1-1 : 表2 で示す割合でMS-1、ポリカーボネート樹脂、スチレン系
10 樹脂、難燃剤、衝撃改質剤、滴下防止剤を混合し、径30mmφのベント式二軸押出機 (日本製鋼所製 ; TEX30XSST) に投入し、シリンダー温度260℃で熔融押出してペレット化した。得られたペレットを100℃で5時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機 (住友重機械工業製 ; SG150U) によりシリンダー温度260℃、金型温度60℃の条件で一辺150mm、厚み3
15 mmの評価用の成形品を得た。その後かかる成形品を恒温恒湿試験機 (タバイエスペック (株) 製プラチナスF) にて、65℃、85%RHの条件下で1000時間放置処理し、湿熱環境下での促進劣化成形品を得た。その後かかる処理成形品を粉碎機 ((株) 朋来鉄工所製SB-210) にて、70kg/hの処理能力で破碎し、V型ブレンダーにて均一にブレンドし成形品破碎物モデルの1回目再
20 生破碎物 (MS-1-1) を得た。MS-1-1 の粘度平均分子量は21,200、および湿熱保持率は51%であった。

MS-1-2 : 破碎物をMS-1 に換えてMS-1-1 とした以外はMS-1-1 と同様に成形、湿熱処理および破碎して成形品破碎物モデルの2回目再生破碎物 (MS-1-2) を得た。MS-1-2 の粘度平均分子量は21,000、お
25 よび湿熱保持率は50%であった。

MS-1-3 : 破碎物をMS-1 に換えてMS-1-2 とした以外はMS-1-1 と同様に成形、湿熱処理および破碎して成形品破碎物モデルの3回目再生破碎物 (MS-1-3) を得た。MS-1-3 の粘度平均分子量は20,800、お

よび湿熱保持率は48%であった。

MS-2-1: 表2で示す割合でMS-2、ポリカーボネート樹脂、スチレン系樹脂、難燃剤、衝撃改質剤、強化充填剤、滴下防止剤を混合し、径30mmφのベント式二軸押出機(日本製鋼所製; TEX30XSST)に投入し、シリンダー温度260℃で溶融押出してペレット化した。得られたペレットを100℃で5時間、熱風循環式乾燥機にて乾燥し、射出成形機(住友重機械工業製; SG150U)によりシリンダー温度260℃、金型温度60℃の条件で一辺150mm、厚み3mmの評価用の成形品を得た。その後かかる成形品を恒温恒湿試験機(タバイエスペック製; プラチナスF)にて、65℃、85%RHの条件下で1000時間放置処理し、湿熱環境下での促進劣化成形品を得た。その後かかる処理成形品を粉砕機((株)朋来鉄工所製SB-210)にて、70kg/hの処理能力で破碎し、V型ブレンダーにて均一にブレンドし成形品破碎物モデルの1回目再生破碎物(MS-2-1)を得た。MS-2-1の粘度平均分子量は21,700、および湿熱保持率は84%であった。

15 MS-2-2: 破碎物をMS-2に換えてMS-2-1とした以外はMS-2-1と同様に成形、湿熱処理および破碎して成形品破碎物モデルの2回目再生破碎物(MS-2-2)を得た。MS-2-2の粘度平均分子量は21,600、および湿熱保持率は83%であった。

MS-2-3: 破碎物をMS-2に換えてMS-2-2とした以外はMS-2-1と同様に成形、湿熱処理および破碎して成形品破碎物モデルの3回目再生破碎物(MS-2-3)を得た。MS-2-3の粘度平均分子量は21,400、および湿熱保持率は81%であった。

(ポリカーボネート樹脂を含有する成形品破碎物)

RE-1~RE-5までの分析結果を表8に、RE-6~RE-8までの分析結果を表9に示す。

表 8

分析手法		単位等	RE-1	RE-2	RE-3	RE-4	RE-5
(i)	主樹脂	—	ポリカーボネート樹脂	ポリカーボネート樹脂 MBS樹脂などの ジエン系ゴム	ポリカーボネート樹脂 ABS樹脂などの ジエン系ゴム	ポリカーボネート樹脂 ABS樹脂などの ジエン系ゴム	ポリカーボネート樹脂 ABS樹脂などの ジエン系ゴム
(ii)	ヒドラジン 分解残渣	重量%	0.3	5	25	22	22
(iii)	灰化残渣	重量%	0.3	0	0.7	0.7	0.7
(iv)	ジエン系ゴム量	重量%	—	2.8	2.5	2.8	2.8
(v)	ヒドラジン 分解残渣内容	—	—	メチルメタクリレート	アクリロニトリル	アクリロニトリル	アクリロニトリル
		—	—	ブタジエン	スチレン	スチレン	スチレン
		—	—	—	ブタジエン	ブタジエン	ブタジエン
		—	—	—	メチルメタクリレート	メチルメタクリレート	メチルメタクリレート
		—	—	—	2-エチルヘキシル アクリレート	ブチルアクリレート	ブチルアクリレート
(vi)	無機成分等 観察	—	—	—	—	環状ジメチル シロキサン	環状ジメチル シロキサン
(vii)	リン酸エステル 種類(★)	X	無機顔料	カーボンブラック	無機顔料	無機顔料	無機顔料
	リン酸エステル量	R1~R4	—	レゾルシノール由来	レゾルシノール由来	レゾルシノール由来	レゾルシノール由来
	PTFE相当量	重量%	—	キシレノール由来	キシレノール由来	フェノール由来	フェノール由来
(viii)	粘度平均分子量	—	16100	10	10	9	9
湿熱保持率	—	—	—	0.2	0.3	0.3	0.3
	—	—	16100	19000	18100	19300	16300
—		%	90	87	85	52	43

★ X, R1~R4は一般式(4)における符号を表わす

表9

分析手法		単位等	RE-6	RE-7	RE-8
(i)	主樹脂	—	ポリカーボネート樹脂 ABS樹脂などのジエン系ゴム	ポリカーボネート樹脂 ABS樹脂などのジエン系ゴム	ポリカーボネート樹脂 ポリエチレンテレフタレート樹脂
(ii)	ヒドラジン分解残渣	重量%	25.0	22.2	10.2
(iii)	灰化残渣	重量%	6.2	0.7	1.9
(iv)	ジエン系ゴム量	重量%	2.5	2.8	6.2
(v)	ヒドラジン分解残渣内容	—	アクリロニトリル	アクリロニトリル	—
		—	スチレン	スチレン	—
		—	ブタジエン	ブタジエン	ブタジエン
		—	メチルメタクリレート	メチルメタクリレート	メチルメタクリレート
		—	2-エチルヘキシルアクリレート	ブチルアクリレート	—
(vi)	無機成分等観察	—	—	環状ジメチルシロキサン	—
(vii)	リン酸エステル種類(★)	—	無機顔料、タルク	無機顔料	無機顔料
		X	レゾルシノール由来	ビスフェノールA由来	—
		R1~R4	キシレノール由来	フェノール由来	—
(viii)	リン酸エステル量	重量%	10	9	—
(ix)	PTFE相当量	重量%	0.3	0.3	0.3
(x)	臭素化合物の有無	—	なし	なし	あり
(xi)	臭素化合物の量	重量%	—	—	8
(xii)	ポリカーボネート/ポリエステルの比率(重量割合)	—	—	—	65/35
粘度平均分子量		—	18,900	17,700	20,300
湿熱保持率		%	88	80	88

★ X, R1~R4は一般式(4)における符号を表わす

- RE-1 : 市場で浴室用電灯カバーに使用されたポリカーボネート樹脂成形品を、水道水で水洗、熱風乾燥機で乾燥した後粉碎機（朋来鉄工所製；SB-210）にて、70kg/hの処理能力で粉碎し、V型ブレンダーにて均一にブレンドし破砕物（RE-1）を得た。RE-1を組成分析した結果は表8に示す通りであった。RE-1の粘度平均分子量は16,100、湿熱保持率は90%であった。
- 5 RE-2 : 市場でノートパソコンのバッテリーパックに使用された成形品をRE-1と同様に水洗、乾燥、破砕、ブレンドし破砕物（RE-2）を得た。RE-2を組成分析した結果は表8に示す通りであった。RE-2の粘度平均分子量は19,000、湿熱保持率は87%であった。
- 10 RE-3 : 市場でノートパソコンのハウジングに使用され、導電塗装膜および金属メッキ膜を有する成形品を、硝酸水溶液に浸漬し、ついで成形品を水洗しこれらの金属成分を除去した成形品を得た。その後RE-1と同様に破砕、ブレンドし破砕物（RE-3）を得た。RE-3を組成分析した結果は表8に示す通りであった。RE-3の粘度平均分子量は18,100、湿熱保持率は85%であった。
- 15 RE-4 : 市場で複写機のハウジングに使用された成形品をRE-1と同様に水洗、乾燥、破砕、ブレンドし破砕物（RE-4）を得た。RE-4を組成分析した結果は表8に示す通りであった。RE-4の粘度平均分子量は19,300、湿熱保持率は52%であった。
- 20 RE-5 : 市場でプリンターのハウジングに使用された成形品をRE-1と同様に水洗、乾燥、破砕、ブレンドし破砕物（RE-5）を得た。RE-5を組成分析した結果は表8に示す通りであり、ほぼRE-4と同様のものと認められた。RE-5の粘度平均分子量は16,300、湿熱保持率は43%であった。
- RE-6 : 市場でノートパソコンのハウジングに使用され、導電塗装膜および金属メッキ膜を有する成形品を、硝酸水溶液に浸漬し、ついで成形品を水洗しこれらの金属成分を除去したライトグレー色である成形品をRE-1と同様に水洗、乾燥、破砕、ブレンドし破砕物（RE-6）を得た。。RE-6を組成分析した結果は表9に示す通りであった。RE-6の粘度平均分子量は18,900、湿
- 25

熱保持率は88%であった。

RE-7:複写機のハウジング成形品(アイボリー色)をRE-1と同様に水洗、乾燥、破碎、ブレンドし破碎物(RE-7)を得た。RE-7を組成分析した結果は表9に示す通りであった。RE-7の粘度平均分子量は17,700、湿熱

5 保持率は80%であった。

RE-8:プリンター内部部品成形品(黒色)をRE-1と同様に水洗、乾燥、破碎、ブレンドし破碎物(RE-8)を得た。RE-8を組成分析した結果は表9に示す通りであった。RE-8の粘度平均分子量は20,300、湿熱保持率は88%であった。

10 (ポリカーボネート樹脂)

PC-1:ポリカーボネート樹脂

帝人化成製;L-1225WP(粘度平均分子量22,500)

PC-2:ポリカーボネート樹脂

帝人化成製;K-1300W(粘度平均分子量30,000)

15 (スチレン系樹脂)

ST-1:ABS樹脂

日本エイアンドエル製;サンタックUT-61

(ポリエステル樹脂)

PET:ポリエチレンテレフタレート樹脂

20 帝人製;TR-8580H

PBT:ポリブチレンテレフタレート樹脂

帝人製;TRB-J

(難燃剤)

FR-1:トリフェニルホスフェート

25 大八化学工業製;TPP

FR-2:レゾルシノールビス(ジキシレニルホスフェート)

旭電化工業製;アデカスタブFP-500

FR-3:ビスフェノールAビス(ジフェニルホスフェート)

- 大八化学工業製；CR-741
- FR-4：レゾルシノールビス（ジフェニルホスフェート）
- 大八化学工業製；CR-733S
- FR-5；テトラプロモビスフェノールAのカーボネートオリゴマー
- 5 帝人化成製；ファイヤガードFG-7000
（ゴム弾性体）
- MD-1：メチルメタクリレート-エチルアクリレート-ブタジエン共重合体
呉羽化学工業製；パラロイドEXL-2602
- MD-2：2-エチルヘキシルアクリレート・ブタジエン・メチルメタクリレー
10 ト・スチレン多段グラフト共重合体
呉羽化学工業製；HIA-15
- MD-3：ポリオルガノシロキサングム成分とポリアルキル（メタ）アクリレー
トゴム成分との複合弾性体
三菱レイヨン製；メタブレンS-2001
- 15 SIS：熱可塑性スチレンエラストマー
クラレ製；セプトン2005
（強化充填剤）
- TD：タルク
林化成製；HS-T0.8（レーザー回折法による平均粒子径約5 μ
20 m）
（滴下防止剤）
- PTFE：フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレン
ダイキン工業製；ポリフロンMPA FA-500
（その他）
- 25 COMP：ポリエステル-スチレン系エラストマー共重合体含有添加剤
クラレ製；TK-S7300
- S-1：ホスファイト系抗酸化剤
日本チバガイギー製；IRGAFOS 168

(着色剤マスター)

DC-1 : 下記の (i) ~ (v) の染料、顔料、および PC-1 をスーパーミキサーで均一に混合したドライカラーマスター。カッコ内の重量%は、DC-1 = 100重量%に対する割合を示す。

- 5 (i) PC-1 (65.6067重量%)
 (ii) RTC30 (33.3333重量%)
 (タイオキサイドジャパン製酸化チタン; R-TC30)
 (iii) CB970 (0.6933重量%)
 (三菱化学製カーボンブラック; カーボンブラック#970)
- 10 (iv) Y8010 (0.2000重量%)
 (有本化学工業製黄色染料; プラストイエロー8010)
- (v) R8360 (0.1667重量%)
 (有本化学工業製赤色染料; プラストレッド8360)

DC-2 : 下記の (vi) ~ (x) の染料、顔料および PC-1 をスーパーミキサーで均一に混合したドライカラーマスター。カッコ内の重量%は、DC-2 = 100重量%に対する割合を示す。

- (vi) PC-1 (47.673重量%)
 (vii) RL-91 (50.000重量%)
 (Millennium Inorganic Chem. 製酸化チタン;
20 TIONA RL-91)
- (viii) CB970 (0.111重量%)
 (三菱化学製カーボンブラック; カーボンブラック#970)
- (ix) Y118S (2.171重量%)
 (日本フエロー製チタンイエロー; フエローカラー42-118S)
- 25 (x) R8370 (0.045重量%)
 (有本化学工業製赤色染料; プラストレッド8370)

発明の効果

本発明の再生樹脂組成物は芳香族ポリカーボネート樹脂の優れた特性を備え、初期機械的強度特に耐衝撃性のほか、長期の機械的強度や難燃性の保持効果に優れているため、電気・電子機器、OA機器等の使用済み製品から発生するポリカーボネート樹脂系成形品を効率よく再生できるものであるばかりでなく、広くこ
5 れらの製品に再生使用可能な十分な特性を有しているため、環境保護、資源の再利用の観点からも非常に有用であり、その奏する工業的効果は格別なものである。

請 求 の 範 囲

1. (I) (1) 芳香族ポリカーボネート樹脂の含有量が30～98重量%の成形品の破砕物であり、
 - 5 (2) 該破砕物は、17,000～30,000の粘度平均分子量を有し、かつ
 - (3) 該破砕物は湿熱保持率が60%以上を有する、を満足する成形品の破砕物 (A成分)、および
 - (II) 芳香族ポリカーボネート樹脂 (B成分) よりなる再生樹脂組成物。
- 10 2. 再生樹脂組成物は、破砕物 (A成分) の含有量が5～60重量%でありかつ芳香族ポリカーボネート樹脂 (B成分) の含有量が5～90重量%である請求項1記載の再生樹脂組成物。
 3. 破砕物 (A成分) は湿熱保持率が70%以上を有する請求項1記載の再生樹脂組成物。
 - 15 4. 破砕物 (A成分) は、スチレン系樹脂 (A-2-PS成分) または芳香族ポリエステル樹脂 (A-2-PE成分) を含有している請求項1記載の再生樹脂組成物。
 - 20 5. 破砕物 (A成分) は、A-2-PS成分またはA-2-PE成分を1～65重量%含有している請求項1記載の再生樹脂組成物。
 6. 破砕物 (A成分) は、難燃剤 (A-3成分) を含有している請求項1記載の再生樹脂組成物。
 - 25 7. 破砕物 (A成分) は、難燃剤としてのリン酸エステル (A-3-a成分) を1～30重量%含有している請求項1記載の再生樹脂組成物。

8. 破砕物 (A成分) は、難燃剤としての有機シロキサン化合物 (A-3-b 成分) を 0.01~10 重量% 含有している請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

- 5 9. 破砕物 (A成分) は、難燃剤としてのアルカリ (土類) 金属塩 (A-3-c 成分) を 0.0005~1 重量% 含有している請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

10. 破砕物 (A成分) は、衝撃改良剤 (A-4成分) を 0.5~20 重量% 含有している請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

10

11. 破砕物 (A成分) は、強化充填剤 (A-5成分) を 1~60 重量% 含有している請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

- 15 12. 破砕物 (A成分) は、芳香族ポリカーボネート樹脂 (A-1成分) の含有量が 40~90 重量% である請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

13. 破砕物 (A成分) は、18,000~26,000 の粘度平均分子量を有する請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

- 20 14. 再生樹脂組成物は、破砕物 (A成分) の含有量が 6~50 重量% でありかつ芳香族ポリカーボネート樹脂 (B成分) の含有量が 10~85 重量% である請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

- 25 15. 破砕物 (A成分) および芳香族ポリカーボネート樹脂 (B成分) よりなる再生樹脂組成物であって、その組成物 (C成分) は、

- (1) 芳香族ポリカーボネート樹脂 (C-1成分) が 30~96 重量%、
- (2) スチレン系樹脂 (C-2-PS成分) が 3~40 重量%、および
- (3) 難燃剤 (C-3成分) が 0.01~30 重量%

よりなる請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

16. さらに衝撃改良剤 (C-4 成分) が 0.5~20 重量%含有されている請求項 15 記載の再生樹脂組成物。

5

17. さらに強化充填剤 (C-5 成分) が 1~60 重量%含有されている請求項 15 または 16 記載の再生樹脂組成物。

18. 難燃剤 (C-3 成分) としてリン酸エステル (C-3-a 成分) が 1~30 重量%含有されている請求項 15 記載の再生樹脂組成物。

19. 湿熱保持率が 60%以上を有する成形品を与える請求項 15 記載の再生樹脂組成物。

15 20. 衝撃値保持率が 60%以上を有する成形品を与える請求項 15 記載の再生樹脂組成物。

21. UL 規格 94 による難燃性テストが V-0 を満足する成形品を与える請求項 15 記載の再生樹脂組成物。

20

22. 破砕物 (A 成分) および芳香族ポリカーボネート樹脂 (B 成分) よりなる再生樹脂組成物であって、その組成物 (C 成分) は、

(1) 芳香族ポリカーボネート樹脂 (C-1 成分) が 30~96 重量%、

(2) 芳香族ポリエステル樹脂 (C-2-PE 成分) が 3~40 重量%、および

25 (3) 難燃剤 (C-3 成分) が 0.01~30 重量%

よりなる請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

23. さらに衝撃改良剤 (C-4 成分) が 0.5~20 重量%含有されている請

求項 2 2 記載の再生樹脂組成物。

2 4. さらに強化充填剤 (C-5 成分) が 1 ~ 6 0 重量%含有されている請求項 2 2 または 2 3 記載の再生樹脂組成物。

5

2 5. 湿熱保持率が 6 0 % 以上を有する成形品を与える請求項 2 2 記載の再生樹脂組成物。

2 6. 衝撃値保持率が 6 0 % 以上を有する成形品を与える請求項 2 2 記載の再生樹脂組成物。

10

2 7. UL 規格 9 4 による難燃性テストが V-0 を満足する成形品を与える請求項 2 2 記載の再生樹脂組成物。

15 2 8. 破砕物 (A 成分) および芳香族ポリカーボネート樹脂 (B 成分) よりなる再生樹脂組成物であって、その組成物 (C 成分) は、

(1) 芳香族ポリカーボネート樹脂 (C-1 成分) が 5 0 ~ 9 8 重量%

(2) 難燃剤 (C-3 成分) が 0. 0 1 ~ 3 0 重量% および

(3) 衝撃改良剤 (C-4 成分) が 0 ~ 2 0 重量%

20 よりなる請求項 1 記載の再生樹脂組成物。

2 9. さらに強化充填剤 (C-5 成分) が 1 ~ 3 0 重量%含有されている請求項 2 8 記載の再生樹脂組成物。

25 3 0. 難燃剤 (C-3 成分) としてリン酸エステル (C-3-a 成分) が 1 ~ 3 0 重量%含有されている請求項 2 8 記載の再生樹脂組成物。

3 1. 湿熱保持率が 6 0 % 以上を有する成形品を与える請求項 2 8 記載の再生樹脂組成物。

脂組成物。

32. 衝撃値保持率が60%以上を有する成形品を与える請求項28記載の再生樹脂組成物。

5

33. UL規格94による難燃性テストがV-0を満足する成形品を与える請求項28記載の再生樹脂組成物。

34. 請求項1、15、22または28のいずれかに記載の再生樹脂組成物より
10 形成された成形品。

35. 湿熱保持率が60%以上を有する請求項34記載の成形品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/JP01/02474

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08L69/00, C08K3/24, C08K5/52, C08L25/00, C08L67/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08L69/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-2001	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2001	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 8-311326, A (Teijin Chem. Ltd.), 26 November, 1996 (26.11.96), page 2, left column, lines 2 to 11 (Family: none)	1-35

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
18 June, 2001 (18.06.01)Date of mailing of the international search report
26 June, 2001 (26.06.01)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 C08L69/00、C08K3/24、C08K5/52、C08L25/00、
C08L67/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 C08L69/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2001年
 日本国公開実用新案公報 1971-2001年
 日本国登録実用新案公報 1994-2001年
 日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 8-311326, A (帝人化成株式会社)、 26.11月. 1996 (26.11.96)、第2頁左欄第2行 -第11行 (ファミリーなし)	1-35

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18.06.01

国際調査報告の発送日

26.06.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森川 聡



4 J

9268

電話番号 03-3581-1101 内線 3456



PCT

REQUEST

The undersigned requests that the present international application be processed according to the Patent Cooperation Treaty.

For receiving Office use only

International Application No.

International Filing Date

Name of receiving Office and "PCT International Application"

Applicant's or agent's file reference
(if desired) (12 characters maximum) G - 3 0 (K A S E I)

Box No. I TITLE OF INVENTION REGENERATED RESIN COMPOSITION	
Box No. II APPLICANT Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.) TEIJIN CHEMICALS, LTD. 2-2, Uchisaiwaicho 1-chome, Chiyoda-ku, TOKYO 100-0011 JAPAN State (that is, country) of nationality: JAPAN State (that is, country) of residence: JAPAN This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input checked="" type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box <input type="checkbox"/> This person is also inventor. Telephone No. Facsimile No. Teleprinter No.	
Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S) Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.) TAKAGI Makoto c/o Teijin Chemicals, Ltd., 2-2, Uchisaiwaicho 1-chome, Chiyoda-ku TOKYO 100-0011 JAPAN State (that is, country) of nationality: JAPAN State (that is, country) of residence: JAPAN This person is: <input type="checkbox"/> applicant only <input checked="" type="checkbox"/> applicant and inventor <input type="checkbox"/> inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.) This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input checked="" type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box <input type="checkbox"/> Further applicants and/or (further) inventors are indicated on a continuation sheet.	
Box No. IV AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE; OR ADDRESS FOR CORRESPONDENCE The person identified below is hereby/has been appointed to act on behalf of the applicant(s) before the competent International Authorities as: <input checked="" type="checkbox"/> agent <input type="checkbox"/> common representative Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.) 8060 OHSHIMA Masataka OHSHIMA PATENT OFFICE, Fukuya Bldg., 3, Yotsuya 4-chome, Shinjuku-ku, TOKYO 160-0004 JAPAN Telephone No. 03-3356-7565 Facsimile No. 03-3356-8826 Teleprinter No. <input type="checkbox"/> Address for correspondence: Mark this check-box where no agent or common representative is/has been appointed and the space above is used instead to indicate a special address to which correspondence should be sent.	



2
17
1

Box No.V DESIGNATION OF STATES

The following designations are hereby made under Rule 4.9(a) (mark the applicable check-boxes; at least one must be marked):

Regional Patent

- ☐ **AP ARIPO Patent:** GH Ghana, GM Gambia, KE Kenya, LS Lesotho, MW Malawi, SD Sudan, SL Sierra Leone, SZ Swaziland, TZ United Republic of Tanzania, UG Uganda, ZW Zimbabwe, and any other State which is a Contracting State of the Harare Protocol and of the PCT
- ☐ **EA Eurasian Patent:** AM Armenia, AZ Azerbaijan, BY Belarus, KG Kyrgyzstan, KZ Kazakhstan, MD Republic of Moldova, RU Russian Federation, TJ Tajikistan, TM Turkmenistan, and any other State which is a Contracting State of the Eurasian Patent Convention and of the PCT
- ☒ **EP European Patent:** AT Austria, BE Belgium, CH and LI Switzerland and Liechtenstein, CY Cyprus, DE Germany, DK Denmark, ES Spain, FI Finland, FR France, GB United Kingdom, GR Greece, IE Ireland, IT Italy, LU Luxembourg, MC Monaco, NL Netherlands, PT Portugal, SE Sweden, and any other State which is a Contracting State of the European Patent Convention and of the PCT
- ☐ **OA OAPI Patent:** BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Central African Republic, CG Congo, CI Côte d'Ivoire, CM Cameroon, GA Gabon, GN Guinea, GW Guinea-Bissau, ML Mali, MR Mauritania, NE Niger, SN Senegal, TD Chad, TG Togo, and any other State which is a member State of OAPI and a Contracting State of the PCT (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line)

National Patent (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line):

- | | |
|---|---|
| <input type="checkbox"/> AE United Arab Emirates | <input type="checkbox"/> LR Liberia |
| <input type="checkbox"/> AL Albania | <input type="checkbox"/> LS Lesotho |
| <input type="checkbox"/> AM Armenia | <input type="checkbox"/> LT Lithuania |
| <input type="checkbox"/> AT Austria | <input type="checkbox"/> LU Luxembourg |
| <input type="checkbox"/> AU Australia | <input type="checkbox"/> LV Latvia |
| <input type="checkbox"/> AZ Azerbaijan | <input type="checkbox"/> MA Morocco |
| <input type="checkbox"/> BA Bosnia and Herzegovina | <input type="checkbox"/> MD Republic of Moldova |
| <input type="checkbox"/> BB Barbados | <input type="checkbox"/> MG Madagascar |
| <input type="checkbox"/> BG Bulgaria | <input type="checkbox"/> MK The former Yugoslav Republic of Macedonia |
| <input type="checkbox"/> BR Brazil | |
| <input type="checkbox"/> BY Belarus | <input type="checkbox"/> MN Mongolia |
| <input type="checkbox"/> CA Canada | <input type="checkbox"/> MW Malawi |
| <input type="checkbox"/> CH and LI Switzerland and Liechtenstein | <input type="checkbox"/> MX Mexico |
| <input checked="" type="checkbox"/> CN China | <input type="checkbox"/> NO Norway |
| <input type="checkbox"/> CR Costa Rica | <input type="checkbox"/> NZ New Zealand |
| <input type="checkbox"/> CU Cuba | <input type="checkbox"/> PL Poland |
| <input type="checkbox"/> CZ Czech Republic | <input type="checkbox"/> PT Portugal |
| <input type="checkbox"/> DE Germany | <input type="checkbox"/> RO Romania |
| <input type="checkbox"/> DK Denmark | <input type="checkbox"/> RU Russian Federation |
| <input type="checkbox"/> DM Dominica | <input type="checkbox"/> SD Sudan |
| <input type="checkbox"/> EE Estonia | <input type="checkbox"/> SE Sweden |
| <input type="checkbox"/> ES Spain | <input type="checkbox"/> SG Singapore |
| <input type="checkbox"/> FI Finland | <input type="checkbox"/> SI Slovenia |
| <input type="checkbox"/> GB United Kingdom | <input type="checkbox"/> SK Slovakia |
| <input type="checkbox"/> GD Grenada | <input type="checkbox"/> SL Sierra Leone |
| <input type="checkbox"/> GE Georgia | <input type="checkbox"/> TJ Tajikistan |
| <input type="checkbox"/> GH Ghana | <input type="checkbox"/> TM Turkmenistan |
| <input type="checkbox"/> GM Gambia | <input type="checkbox"/> TR Turkey |
| <input type="checkbox"/> HR Croatia | <input type="checkbox"/> TT Trinidad and Tobago |
| <input type="checkbox"/> HU Hungary | <input type="checkbox"/> TZ United Republic of Tanzania |
| <input type="checkbox"/> ID Indonesia | <input type="checkbox"/> UA Ukraine |
| <input type="checkbox"/> IL Israel | <input type="checkbox"/> UG Uganda |
| <input type="checkbox"/> IN India | <input checked="" type="checkbox"/> US United States of America |
| <input type="checkbox"/> IS Iceland | |
| <input type="checkbox"/> JP Japan | <input type="checkbox"/> UZ Uzbekistan |
| <input type="checkbox"/> KE Kenya | <input type="checkbox"/> VN Viet Nam |
| <input type="checkbox"/> KG Kyrgyzstan | <input type="checkbox"/> YU Yugoslavia |
| <input type="checkbox"/> KP Democratic People's Republic of Korea | <input type="checkbox"/> ZA South Africa |
| <input checked="" type="checkbox"/> KR Republic of Korea | <input type="checkbox"/> ZW Zimbabwe |
| <input type="checkbox"/> KZ Kazakhstan | |
| <input type="checkbox"/> LC Saint Lucia | |
| <input type="checkbox"/> LK Sri Lanka | |

Check-boxes reserved for designating States which have become party to the PCT after issuance of this sheet:

- ☐
- ☐

Precautionary Designation Statement: In addition to the designations made above, the applicant also makes under Rule 4.9(b) all other designations which would be permitted under the PCT except any designation(s) indicated in the Supplemental Box as being excluded from the scope of this statement. The applicant declares that those additional designations are subject to confirmation and that any designation which is not confirmed before the expiration of 15 months from the priority date is to be regarded as withdrawn by the applicant at the expiration of that time limit. (Confirmation (including fees) must reach the receiving Office within the 15-month time limit.)



Box No. VI PRIORITY CLAIM		<input type="checkbox"/> Further priority claims are indicated in the Supplemental Box.		
Filing date of earlier application (day/month/year)	Number of earlier application	Where earlier application is:		
		national application: country	regional application:* regional Office	international application: receiving Office
item (1) 28.03.00	Patent Application No.2000-088195	Japan		
item (2)				
item (3)				

☒ The receiving Office is requested to prepare and transmit to the International Bureau a certified copy of the earlier application(s) (only if the earlier application was filed with the Office which for the purposes of the present international application is the receiving Office) identified above as item(s): (1)

* Where the earlier application is an ARIPO application, it is mandatory to indicate in the Supplemental Box at least one country party to the Paris Convention for the Protection of Industrial Property for which that earlier application was filed (Rule 4.10(b)(ii)). See Supplemental Box.

Box No. VII INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY			
Choice of International Searching Authority (ISA) <small>(if two or more International Searching Authorities are competent to carry out the international search, indicate the Authority chosen; the two-letter code may be used):</small> ISA/JP	Request to use results of earlier search; reference to that search (if an earlier search has been carried out by or requested from the International Searching Authority): Date (day/month/year) Number Country (or regional Office)		

Box No. VIII CHECK LIST; LANGUAGE OF FILING	
This international application contains the following number of sheets: request : 3 description (excluding sequence listing part) : 69 claims : 5 abstract : 1 drawings : 0 sequence listing part of description : 0 Total number of sheets : 78	This international application is accompanied by the item(s) marked below: 1. <input checked="" type="checkbox"/> fee calculation sheet 2. <input checked="" type="checkbox"/> separate signed power of attorney 3. <input type="checkbox"/> copy of general power of attorney, reference number, if any: 4. <input type="checkbox"/> statement explaining lack of signature 5. <input type="checkbox"/> priority document(s) identified in Box No. VI as item(s): 6. <input type="checkbox"/> translation of international application into (language): 7. <input type="checkbox"/> separate indications concerning deposited microorganism or other biological material 8. <input type="checkbox"/> nucleotide and/or amino acid sequence listing in computer readable form 9. <input type="checkbox"/> other (specify):
Figure of the drawings which should accompany the abstract:	Language of filing of the international application: Japanese

Box No. IX SIGNATURE OF APPLICANT OR AGENT
Next to each signature, indicate the name of the person signing and the capacity in which the person signs (if such capacity is not obvious from reading the request). <div style="text-align: center; padding: 20px;"> (8060) OHSIMA Masataka, patent attorney </div>

For receiving Office use only	
1. Date of actual receipt of the purported international application: 3. Corrected date of actual receipt due to later but timely received papers or drawings completing the purported international application: 4. Date of timely receipt of the required corrections under PCT Article 11(2): 5. International Searching Authority (if two or more are competent): ISA/JP	2. Drawings: <input type="checkbox"/> received: <input type="checkbox"/> not received: 6. <input type="checkbox"/> Transmittal of search copy delayed until search fee is paid.

Date of receipt of the record copy by the International Bureau:



PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

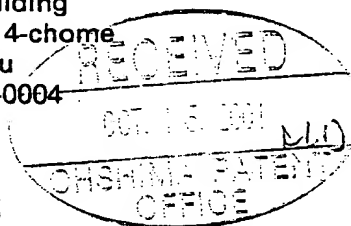
(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

OHSHIMA, Masataka
Ohshima Patent Office
Fukuya Building
3, Yotsuya 4-chome
Shinjuku-ku
Tokyo 160-0004
JAPON

OCT 16 2001



Date of mailing (day/month/year) 04 October 2001 (04.10.01)		
Applicant's or agent's file reference G-30 (KASEI)		IMPORTANT NOTICE
International application No. PCT/JP01/02474	International filing date (day/month/year) 27 March 2001 (27.03.01)	Priority date (day/month/year) 28 March 2000 (28.03.00)
Applicant TEIJIN CHEMICALS, LTD. et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

CN,EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 04 October 2001 (04.10.01) under No. WO 01/72900

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer J. Zahra
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38



国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 G-30(KASEI)	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO1/02474	国際出願日 (日.月.年) 27.03.01	優先日 (日.月.年) 28.03.00
出願人(氏名又は名称) 帝人化成株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

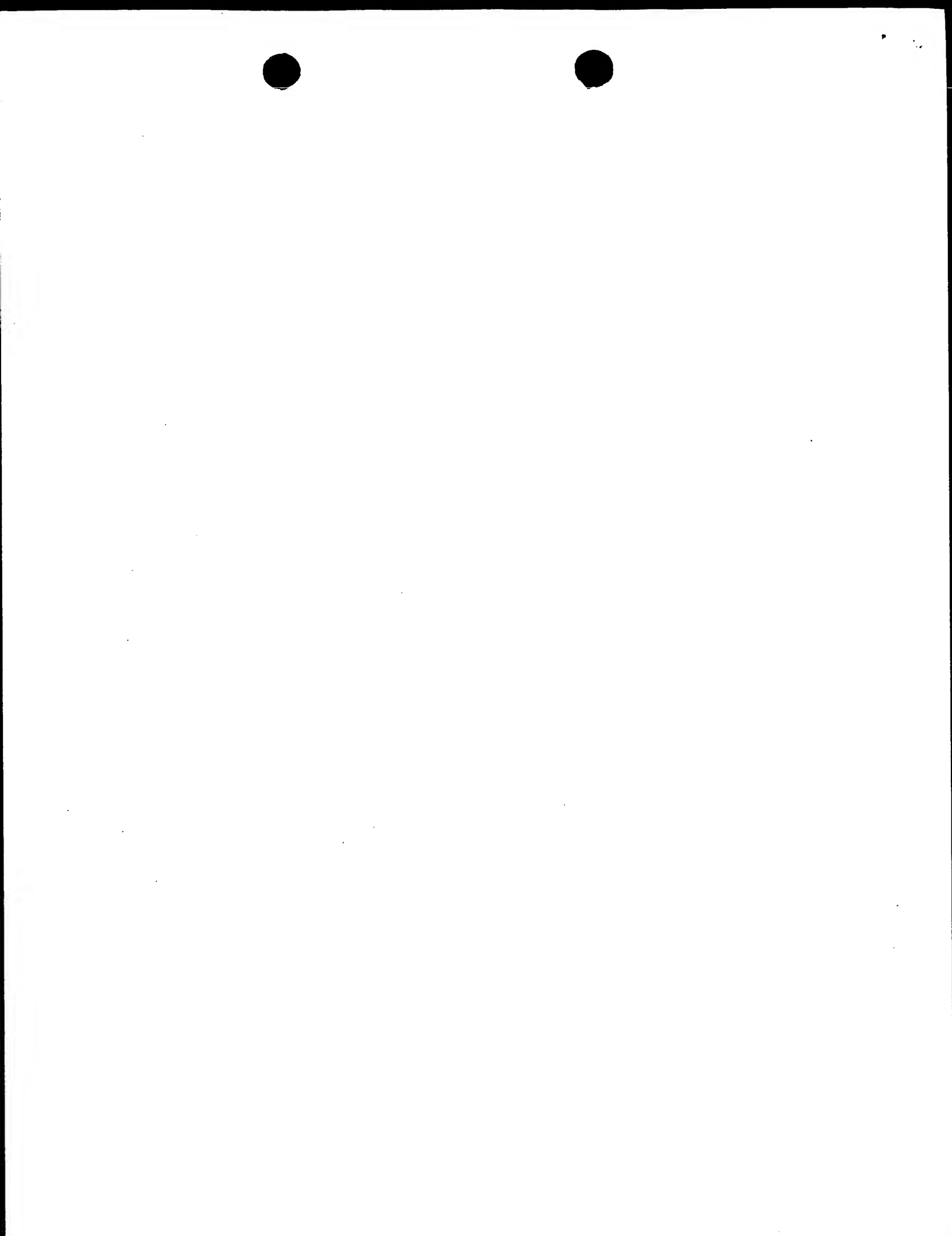
6. 要約書とともに公表される図は、

第 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08L69/00、C08K3/24、C08K5/52、C08L25/00、
C08L67/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08L69/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2001年
 日本国公開実用新案公報 1971-2001年
 日本国登録実用新案公報 1994-2001年
 日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 8-311326, A (帝人化成株式会社)、 26. 11月. 1996 (26. 11. 96)、第2頁左欄第2行 -第11行 (ファミリーなし)	1-35

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18. 06. 01

国際調査報告の発送日

26.06.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森川 聡

4 J

9268

電話番号 03-3581-1101 内線 3456

